



# Relaxation et décohérence des polarons dans les boîtes quantiques de semi-conducteurs

Thomas Grange

## ► To cite this version:

Thomas Grange. Relaxation et décohérence des polarons dans les boîtes quantiques de semi-conducteurs. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2008. Français. <tel-00333256>

**HAL Id: tel-00333256**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00333256>**

Submitted on 22 Oct 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE  
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ  
PIERRE ET MARIE CURIE (PARIS VI)

Spécialité : Physique Quantique

présentée par

**Thomas GRANGE**

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

**Relaxation et décohérence des polarons  
dans les boîtes quantiques de semi-conducteurs**

Soutenue le 25 septembre 2008 devant le jury composé de :

M. Gérald Bastard	Directeur de thèse
M. Philippe Boucaud	Rapporteur
Mme Maria Chamarro	Président
M. Robson Ferreira	Co-Directeur de thèse
M. Bernard Jusserand	Rapporteur
M. Maurice Skolnick	Examineur



# Remerciements

*Je remercie tout d'abord Philippe Boucaud, Bernard Jusserand, Maria Chamarro et Maurice Skolnick d'avoir accepté de faire partie de mon jury.*

*Je remercie Claude Delalande, directeur du laboratoire Pierre Aigrain lors de mes deux premières années de thèse, ainsi que Jean-Marc Berroir qui lui a succédé.*

*Je suis particulièrement reconnaissant à Robson Ferreira et Gérald Bastard de m'avoir encadré tout au long de cette thèse. Je les remercie non seulement pour leurs qualités scientifiques, mais aussi pour leur gentillesse et leur bonne humeur. Un très grand merci à Robson qui m'a encadré au quotidien.*

*Le dialogue entre théorie et expérience étant au cœur de cette thèse, je remercie tous ceux qui ont fourni les résultats expérimentaux présentés dans ce mémoire.*

*Je remercie le groupe infra-rouge lointain d'Yves Guldner avec qui j'ai interagi concernant l'étude des polarons excitoniques. Merci en particulier à Vanessa Preisler pour son travail remarquable.*

*I acknowledge the group of Maurice Skolnick at Sheffield University, in particular Evgeny Zibik and Luke Wilson, for all the work done in collaboration concerning the dynamics of intraband transitions. Their experimental results have motivated most of the theoretical work presented here. I thank Evgeny for all the discussions we had (the more often via e-mail), contributing to my understanding of the experiments.*

*Merci à tous les thésards, ex-thésards et postdoc que j'ai croisé au cours de ces trois années et avec qui j'ai partagé de bons moments : Ricardo, Alice, Michael, Arnaud V., Arnaud I., Sébastien, Carole, Dimitri, Timothée, Tchung, Florian, Nathan, Marilza, Yu Chen, Adrien, Thomas, Julien, Lorenz, Zhen-Yu, Nicolas, ainsi que ceux que j'oublie.*

*Je remercie également les permanents du laboratoire, notamment Guillaume Cas-sabois, Sukhdeep Dhillon, Louis-Anne de Vaultier, Philippe Roussignol, Christophe Voisin, Jérôme Tignon, Sophie Hameau, Cristophe Mora, Nicolas Regnault et Pascal Morfin. Merci aussi à Anne Matignon et Fabienne Rénia pour leur aide sur tous les aspects administratifs.*

*En dehors du labo, je remercie tous ceux qui ont rendu ces trois années agréables, notamment les fanfarons du Poil O'Brass Band et mes co-équipiers du basket de Paris 6.*

*Merci à mes parents de m'avoir permis d'arriver jusque là.*

*Enfin, un immense merci à Aurélie pour tout le reste.*

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation</b>	<b>15</b>
1.1 Les différents types de boîtes quantiques de semi-conducteurs . . . . .	15
1.2 Les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs . . . . .	16
1.3 Les états électroniques . . . . .	17
1.3.1 Méthode variationnelle . . . . .	19
1.3.2 Energies des niveaux confinés . . . . .	20
1.3.3 Interaction coulombienne . . . . .	22
1.3.4 Modélisation des paramètres des boîtes . . . . .	22
1.4 Transitions optiques . . . . .	25
1.4.1 Transitions intrabandes . . . . .	25
1.4.2 Transitions interbandes . . . . .	26
1.5 Interaction électron-phonon . . . . .	26
1.5.1 Phonons acoustiques . . . . .	26
1.5.1.1 Potentiel de déformation . . . . .	26
1.5.1.2 Effet piézoélectrique . . . . .	27
1.5.2 Phonons optiques . . . . .	28
<b>2 Polarons électroniques et excitoniques</b>	<b>31</b>
2.1 Le couplage fort électron-phonon-LO . . . . .	31
2.1.1 Couplage d'un état discret à un continuum de largeur finie . . . . .	32
2.1.2 Couplage fort dans les boîtes . . . . .	33
2.2 Les états polarons dans le cadre de l'approximation des phonons monochromatiques . . . . .	36
2.2.1 Modes de phonons couplés . . . . .	36
2.2.2 Couplages de Fröhlich non-diagonaux . . . . .	38
2.2.2.1 Système à 2 niveaux . . . . .	38
2.2.2.2 Polarons de polarisation $x$ et $y$ . . . . .	39
2.2.2.3 Traitement complet . . . . .	39
2.2.3 Couplages de Fröhlich diagonaux . . . . .	41
2.3 Les polarons excitoniques . . . . .	43
2.3.1 Expériences de photo-luminescence d'excitation (PLE) . . . . .	43

## Table des matières

---

2.3.2	Modélisation . . . . .	45
2.3.3	Couplage exciton-phonon-LO . . . . .	47
2.3.4	Force d'oscillateur . . . . .	52
2.3.5	Comparaison théorie-expérience . . . . .	53
<b>3</b>	<b>Relaxation des polarons</b>	<b>55</b>
3.1	Les modèles antérieurs et leurs limites . . . . .	56
3.2	Le modèle semi-classique . . . . .	56
3.3	États polarons couplés à un réservoir multi-phonons . . . . .	59
3.3.1	Règle d'or de Fermi . . . . .	60
3.3.2	Hamiltonien non-hermitique . . . . .	60
3.4	Conséquences de l'anharmonicité du cristal pour les polarons . . . . .	63
3.4.1	Temps de vie des phonons-LO dans le massif . . . . .	63
3.4.2	Terme anharmonique cubique . . . . .	63
3.4.3	Calcul de l'instabilité induite par l'anharmonicité . . . . .	64
3.5	Temps de vie dans la gamme térahertz . . . . .	68
3.5.1	Modélisation des boîtes recuites . . . . .	69
3.5.2	Ternaire à 2 modes de phonons-LO . . . . .	70
3.5.3	Terme anti-résonnant . . . . .	75
3.5.4	Temps de vie des polarons : comparaison théorie-expérience . . . . .	77
3.5.5	Transition entre anharmonicité et émission de phonons acoustiques . . . . .	78
3.5.6	Thermalisation entre $p_y$ et $p_x$ . . . . .	80
3.6	Simulation d'expériences pompe-sonde . . . . .	82
3.6.1	Signal mesuré . . . . .	82
3.6.2	Signal pompe-sonde avec thermalisation entre $p_x$ et $p_y$ . . . . .	83
<b>4</b>	<b>Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons</b>	<b>85</b>
4.1	Résultats expérimentaux . . . . .	85
4.2	Spectre énergétique d'une boîte doublement chargée . . . . .	87
4.3	Relaxation des polarons singulets . . . . .	89
4.4	Interaction spin-orbite . . . . .	90
4.4.1	Boîte à 1 électron . . . . .	91
4.4.2	Retournement du spin entre sous-niveaux Zeeman . . . . .	91
4.4.3	Boîte à 2 électrons . . . . .	94
4.5	Relaxation de singulet à triplet . . . . .	95
4.6	Relaxation entre états triplets . . . . .	95
4.7	Temps de vie de l'état triplet . . . . .	96
4.8	Expériences pompe-sonde : comparaison expériences-simulations . . . . .	98

<b>5</b>	<b>Cohérence des transitions intrabandes</b>	<b>105</b>
5.1	Résultats expérimentaux et problématiques . . . . .	106
5.1.1	Expérience de mélange à quatre ondes . . . . .	106
5.1.2	Cohérence à basse température . . . . .	107
5.1.3	Décohérence à température élevée : rôle des phonons acoustiques ? . . . . .	108
5.2	Ailes de phonons acoustiques . . . . .	109
5.2.1	Ailes de phonons en interbande . . . . .	110
5.2.2	Ailes de phonons en intrabande . . . . .	111
5.3	Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$ . . . . .	114
5.3.1	Généralités sur la décohérence . . . . .	115
5.3.2	Calcul de la décohérence . . . . .	116
5.3.3	Comparaison théorie-expérience . . . . .	122
5.4	Echo de photon : comparaison théorie-expérience . . . . .	125
	<b>Conclusion</b>	<b>129</b>
<b>A</b>	<b>Couplage Huang-Rhys à un continuum de phonons</b>	<b>131</b>
<b>B</b>	<b>Écho de photon en présence d'ailes de phonons</b>	<b>137</b>
B.1	Cas d'un déphasage exponentiel . . . . .	137
B.2	Prise en compte des ailes de phonons acoustiques . . . . .	139
<b>C</b>	<b>Liste de publications</b>	<b>143</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>151</b>



## Table des matières

---

# Table des figures

1.1	Images d'échantillons de boîtes auto-assemblées InAs/GaAs . . . . .	17
1.2	Modélisation d'une boîte quantique en forme de cône tronqué. . . . .	19
1.3	Fonctions d'ondes des niveaux $s$ et $p$ . . . . .	21
1.4	Spectre d'absorption intrabande. . . . .	21
1.5	Energie des deux premiers niveaux confinés $s$ et $p$ en fonction des paramètres de la boîte quantique. . . . .	23
1.6	Interaction coulombienne pour une paire électron-trou confinée dans une boîte . . . . .	24
1.7	Diagramme énergies de transition intrabande-interbande en fonction des paramètres des boîtes . . . . .	25
2.1	Densité de couplage pour des phonons-LO dispersifs . . . . .	35
2.2	Comparaison des fonctions déplacement : calcul exact et approximation des phonons monochromatiques . . . . .	36
2.3	Anticroisement entre les niveaux de polarons électroniques . . . . .	39
2.4	Schéma des couplages de Fröhlich entre les deux états $p$ et les répliques phonons-LO de $s$ . . . . .	40
2.6	Photoluminescence d'excitation . . . . .	44
2.7	Modes de phonons . . . . .	49
2.8	Base d'états découplés électron-trou-phonon. Leur moment cinétique total $L_z$ est indiqué dans la dernière colonne. . . . .	49
2.9	Diagramme d'énergie des états découplés. . . . .	50
2.10	Energie des niveaux de polarons excitoniques en fonction du champ magnétique. . . . .	50
2.11	Comparaison théorie-expérience pour les spectres de PLE. . . . .	54
3.1	Modèle semi-classique . . . . .	58
3.2	Schéma de la désintégration des polarons . . . . .	59
3.3	Efficacité des processus anharmonique en fonction de l'énergie . . . . .	65
3.4	Temps de vie du polaron en fonction de l'énergie . . . . .	68
3.5	Modélisation du recuit. . . . .	70
3.7	Modes de phonons optiques pour le ternaire $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ . . . . .	71
3.8	Couplage de Fröhlich en fonction de l'énergie intrabande. . . . .	72

## Table des figures

---

3.9	Magnéto-transmission mettant en évidence 2 modes de phonons-LO .	74
3.10	Temps de vie des polarons de basses énergies . . . . .	78
3.11	Transition entre relaxation polaronique et émission de phonons acoustiques . . . . .	79
3.12	Temps de relaxation entre les niveaux $p$ . . . . .	81
3.13	Expérience pompe-sonde et simulation . . . . .	83
4.1	Signal pompe-sonde pour des boîtes à 1 ou 2 électrons . . . . .	86
4.2	Diagramme énergétique des boîtes doublement chargées . . . . .	88
4.3	Temps de relaxation du spin mesuré (a) et calculé (b) entre les sous-niveaux Zeeman de l'état électronique fondamental $s$ pour une boîte quantique chargée avec un électron en fonction du champ magnétique.	93
4.4	Temps de retournement du spin entre singulets et triplets et temps de relaxation entre triplets en fonction de l'anisotropie . . . . .	96
4.5	Comparaison simulation-expérience pour le signal pompe-sonde . . . .	99
4.6	Dépendance en température du signal pompe-sonde (simulations et expériences) . . . . .	102
5.1	Comparaison entre les signaux d'écho de photon et pompe-sonde . . . .	106
5.2	Echo de photon pour des énergies d'excitation de 48 meV et 53 meV	107
5.3	Comparaison entre les ailes de phonons des transitions intrabandes et interbandes . . . . .	112
5.4	Ailes de phonons intrabandes . . . . .	113
5.5	Ailes de phonons intrabandes . . . . .	113
5.6	Schéma des couplages intervenant dans les processus à 2 phonons. . .	117
5.7	Largeur homogène de la transition $s$ - $p_x$ en fonction de la séparation entre $p_x$ et $p_y$ . . . . .	123
5.9	Dépendance en température de la largeur homogène des transitions intrabandes . . . . .	124
5.10	Largeur homogène des transitions intrabandes : dépendance en température pour différentes anisotropies. . . . .	124
5.11	Signal de mélange à quatre ondes . . . . .	126
5.12	Intensité relative de la raie à zéro-phonon en fonction de la température	127

# Introduction

En physique des semi-conducteurs, les systèmes de dimensionnalité réduite sont largement étudiés depuis les années 70. Les puits quantiques [1], où les porteurs sont confinés selon l'axe de croissance d'une hétérostructure de semi-conducteurs, ont fait l'objet de nombreuses applications en micro-électronique et en opto-électronique. Dans ce dernier domaine, le confinement des porteurs permet une meilleure efficacité radiative comparé aux simples jonctions  $p - n$ . Les diodes lasers à base de puits quantiques sont ainsi utilisés quotidiennement (lecteurs de disques numériques, télécommunications...).

Dans les années 80, des systèmes de dimensionnalité encore plus réduite ont été découverts, dont notamment les boîtes quantiques [2] où le mouvement des porteurs est quantifié selon les trois dimensions. Depuis, les boîtes quantiques ont fait l'objet de nombreuses études, notamment les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs qui constituent un système modèle. Une partie des applications consiste à améliorer certaines propriétés opto-électroniques des puits quantiques. Les lasers à base de boîtes quantiques [3, 4] offrent des seuils plus bas et sont moins sensibles aux fluctuations de température. De plus, l'émission laser peut avoir lieu dans une large bande spectrale du fait de la dispersion en taille des boîtes quantiques. D'autre part, les boîtes quantiques sont de bons candidats pour l'information quantique. En effet, la nature discrète de leurs niveaux d'énergie leur confère certaines propriétés des atomes, tout en pouvant être aisément intégré à des dispositifs miniaturisés. Plusieurs réalisations d'un ordinateur quantique ont été proposées [5, 6], notamment basées sur la manipulation du spin d'un électron piégé dans une boîte. D'autre part les boîtes quantiques pourraient permettre de réaliser des sources de photons uniques [7] ou de paires intriquées [8], avec comme application potentielle la cryptographie quantique.

La majeure partie des études réalisées sur les boîtes quantiques porte sur les transitions interbandes, dont la longueur d'onde se situe dans le visible ou proche infra-rouge. Les transitions intrabandes [9, 10] se situent généralement dans le domaine de l'infra-rouge lointain, où les sources et détecteurs sont plus difficilement disponibles. Les boîtes quantiques pourraient être utilisées comme source ou détecteur dans cette région spectrale, étant donné que les temps de vie des états excités sont beaucoup plus longs que dans les puits quantiques [11, 12]. Par ailleurs, la réalisation d'un ordinateur quantique basé sur ces transitions intrabandes a été proposée [6]. L'étude approfondie des processus de relaxation et de décohérence constitue une

étape clé en vue de telles applications. Les relaxation de l'énergie, de la cohérence ou du spin sont également des thématiques communes aux études interbandes, notamment lorsque l'excitation se fait via des niveaux excités.

Dans les boîtes quantiques, les différents modes de vibrations du cristal (phonons acoustiques et optiques) constituent le principal réservoir capable de relaxer l'énergie ou la cohérence des états électroniques. Cependant, du fait de la nature discrète des niveaux électroniques, les mécanismes en jeu sont différents de ceux connus pour les systèmes de plus grande dimensionnalité qui présentent des continus d'états électroniques. En particulier, les niveaux électroniques et les phonons optiques longitudinaux (LO) sont en régime de couplage fort [13], ce qui donne naissance à des quasi-particules appelées polarons. L'émission de phonon-LO est par conséquent impossible. Des études théoriques [14, 15] ont montré qu'il fallait prendre en compte le temps de fin de phonons-LO pour pouvoir expliquer le temps de vie fini de ces états. Cependant, les résultats expérimentaux sur la dynamique des transitions intrabandes [11, 12] n'étaient pas décrit de manière satisfaisante par les modèles existants. Par ailleurs, aucune étude de la cohérence de ces transitions n'avait été faite jusqu'ici.

Dans cette thèse, on s'intéresse à l'étude des conséquences des diverses interactions électrons-phonons sur les propriétés optiques des boîtes quantiques de semi-conducteur. Ce travail de théorie et de modélisation a été effectué en étroite collaboration avec les groupes expérimentaux suivants :

- le groupe infra-rouge lointain d'Yves Guldner à l'ENS pour l'étude des polarons excitoniques (thèse de Vanessa Preisler [16]) présenté dans le chapitre 2.
- le groupe de Maurice Skolnick à l'université de Sheffield (en particulier Evgeny Zibik et Luke Wilson) pour toutes les expériences de dynamique présentées dans les chapitres 3, 4 et 5.

Ce mémoire s'articule de la façon suivante :

Dans le **chapitre 1**, nous présenterons brièvement les boîtes quantiques semi-conductrices. Après avoir vu la croissance de ces nanostructures, on présentera un calcul des états électroniques, ainsi qu'une modélisation des paramètres des boîtes à partir de mesures des énergies de transitions interbandes et intrabandes. On rappellera les différents types de transitions optiques dans les hétérostructures de semi-conducteurs, ainsi que les différents types d'interaction électron-phonon.

Dans les boîtes quantiques, électrons et phonons-LO sont en régime de couplage fort et forment des quasi-particules appelées polarons (**chapitre 2**). Nous présenterons d'abord le calcul des états polarons formés par l'interaction entre électrons et phonons-LO. Puis nous étudierons le cas des polarons excitoniques, mis en évidence par des expériences de photoluminescence d'excitation (PLE) en présence d'un champ magnétique.

Nous étudierons ensuite (**chapitre 3**) la relaxation de ces états polarons. Au-delà du modèle semi-classique où le temps de vie du polaron est déterminé uniquement par le poids de sa composante phonon-LO, nous décrirons en détail comment l'an-

harmonicité du cristal est responsable de l'instabilité des états polarons.

Dans le **chapitre 4**, nous étudierons les mécanismes de retournement du spin dans une boîte contenant deux électrons. L'interaction spin-orbite, ajoutée aux couplages aux phonons acoustiques et optiques, rend possible un retournement du spin entre les états singulets et triplets.

Enfin (**chapitre 5**) nous étudierons la cohérence des transitions intrabandes. En plus du mécanisme de désintégration des polarons, des mécanismes assistés par phonons acoustiques donnent lieu à des pertes de cohérence additionnelles à température non nulle : les ailes de phonons acoustiques provoquent des oscillations amorties de la cohérence, alors que les transitions réelles et virtuelles entre niveaux excités donnent lieu à une décroissance exponentielle de la cohérence.



# Chapitre 1

## Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

On appelle boîte quantique une nanostructure dans laquelle le confinement des porteurs dans les trois dimensions est suffisamment important pour que l'on puisse observer la nature discrète des niveaux d'énergie. Elles sont ainsi qualifiées de structure zéro-dimensionnelle (0-D), par contraste avec les matériaux massifs (3D), les structures 2-D (puits quantiques) ou 1-D (fils quantiques).

Après avoir énuméré les différentes structures pouvant être désignées par l'appellation « boîtes quantiques », nous présenterons le système de boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs, qui fera l'objet de cette thèse. On exposera ensuite la méthode de calcul des états électroniques. Enfin on rappellera de manière générale les caractéristiques du couplage des électrons à la lumière, ainsi que l'interaction avec les modes de vibrations du cristal.

### 1.1 Les différents types de boîtes quantiques de semi-conducteurs

On peut distinguer différents types de boîtes quantiques de semi-conducteurs suivant leurs modes d'obtention :

- les boîtes obtenues par confinement d'un gaz d'électron bidimensionnel (boîtes « mésoscopiques »). Le confinement latéral peut être obtenu par gravure d'un puits quantique, ou bien par un confinement électrostatique grâce à des électrodes. Ce type de structure est généralement étudié via ses propriétés de transport.
- les boîtes définies par les fluctuations de l'épaisseur d'un puits quantique (boîtes d'interfaces).
- les nanocristaux de semi-conducteurs, qui sont obtenus chimiquement sous forme de colloïdes en solution. Ils sont notamment utilisés en biologie comme marqueurs fluorescents.



## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

---

- les boîtes auto-assemblées obtenues en matrice solide, qui font l’objet de cette thèse.

Dans cette thèse, on modélise des phénomènes de relaxation et de décohérence dans des boîtes auto-assemblées InAs/GaAs. Les différents types de boîtes de semi-conducteurs ont de nombreux points communs qui découlent de la nature discrète des niveaux électroniques. Ainsi certains phénomènes étudiés dans cette thèse peuvent être mis en relation avec des propriétés présentes dans d’autres types de boîtes. Cependant, on peut citer d’emblée quelques différences notables :

- Dans les boîtes obtenues par gravure, la taille latérale est limitée par la technologie, actuellement à plusieurs dizaines de nanomètres, ce qui correspond à des énergies de confinement au maximum de quelques meV. Les techniques de type auto-assemblage permettent d’obtenir des énergies inter-niveaux beaucoup plus grandes, de l’ordre de plusieurs dizaines de meV. Le type de mécanisme de relaxation dépend principalement de l’énergie en jeu. Ainsi l’interaction avec les phonons optiques est déterminante pour les boîtes auto-assemblées, alors que l’interaction aux phonons acoustique est à priori dominante pour les boîtes gravées.
- Dans les nanocristaux, l’effet du confinement des modes de phonons acoustiques sur les propriétés optiques est mis en évidence [17]. De tels effets sont négligés ici dans les boîtes en matrice solide où les deux matériaux employés ont des impédances acoustiques voisines.

### 1.2 Les boîtes auto-assemblées InAs/GaAs

Les boîtes auto-assemblées sont obtenues grâce à la transition de Stranski-Krastanov [18] : la croissance d’arséniure d’indium (InAs) sur un substrat d’arséniure de gallium (GaAs) donne lieu à la formation spontanée d’îlots d’InAs du fait du désaccord de maille important (7%) entre les deux matériaux [19]. La technique de croissance généralement employée pour obtenir ces structures est celle d’épitaxie par jet moléculaire (MBE).

Dans un premier temps, la croissance d’InAs sur le substrat de GaAs se fait de façon bidimensionnelle, l’InAs se répartissant de façon homogène sur la surface. Lorsque l’épaisseur moyenne dépasse environ 1,7 monocouches d’InAs [20], un changement de régime est observé : la croissance devient tridimensionnelle avec la nucléation d’îlots d’InAs. Ce mode de croissance est énergétiquement favorable car il permet de relaxer partiellement la contrainte imposée par le substrat.

Les îlots obtenus sont appelés boîtes quantiques auto-assemblées. La fine couche sur laquelle il repose, correspondant au mode initial de croissance, est appelée couche de mouillage.

Le plan de boîtes quantiques obtenus est ensuite recouvert par une épaisse couche de GaAs. On peut faire croître un seul plan de boîtes, notamment pour étudier les propriétés d’une boîte unique. Au contraire, pour étudier les propriétés optiques d’un

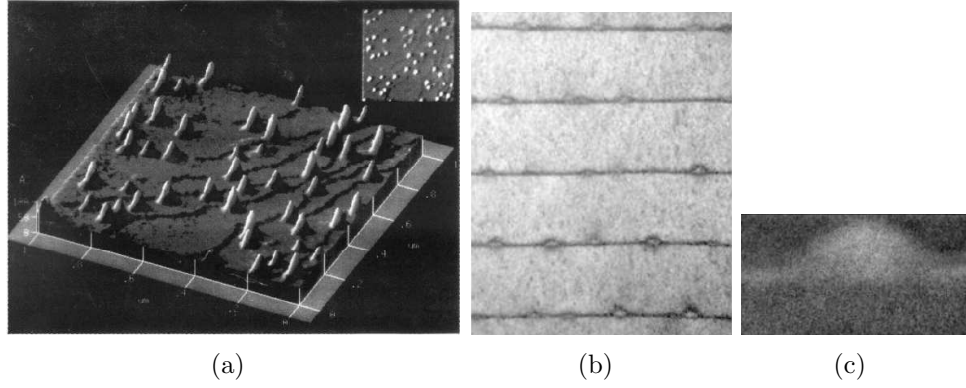


FIG. 1.1: (a) Image de microscopie à force atomique d'un plan de boîtes quantiques InAs/GaAs (J. M. Moison CNET). (b) et (c) Images en coupe d'un échantillon comportant plusieurs couches de boîtes auto-assemblées InAs/GaAs (University of Sheffield).

ensemble de boîtes, plusieurs dizaines de ces couches sont empilées afin de maximiser l'interaction avec la lumière.

Les caractéristiques moyennes des boîtes obtenues dépendent des paramètres de croissance employés. De plus, dans un ensemble de boîtes, il existe une dispersion de taille et de composition autour de ces valeurs moyennes. Nous verrons que cela donne lieu à des élargissement des raies d'absorptions (ou d'émission) dus à la nature inhomogène de l'ensemble (de l'ordre de 10% de l'énergie de transition en intrabande) par rapport à la largeur de raie intrinsèque d'une boîte, appelée largeur homogène. La densité est également variable, entre  $10^8 \text{cm}^{-2}$  et  $10^{11} \text{cm}^{-2}$  selon les paramètres de croissance. Elle est d'environ  $4 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$  dans les expériences mentionnées dans cette thèse. Cela correspond à une distance moyenne entre boîtes d'environ 50nm, ce qui permet de négliger les interactions entre électrons piégées dans des boîtes voisines. Les couches successives sont également séparées de plusieurs dizaines de nanomètres. La réduction de cette séparation permet d'obtenir des boîtes couplées verticalement (ou molécules).

Afin d'étudier les transitions intrabandes, il est nécessaire de doper les boîtes : des atomes de silicium sont insérés lors de la croissance, typiquement 2nm en dessous de la couche de mouillage. Les atomes de Si agissent comme des donneurs. Leurs concentrations est ajustée, afin d'obtenir un nombre moyen d'électrons par boîte de 1, 2 ou plus.

### 1.3 Les états électroniques

Différents types de calculs des états électroniques dans les hétérostructures de semi-conducteurs [1, 21] ont été appliqués aux boîtes quantiques : on distingue les méthodes de fonctions enveloppes à une [22] ou plusieurs bandes [23, 24], les mé-

## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

thodes atomistiques utilisant des pseudo-potentiels [25] ou encore les méthodes de liaisons fortes [26]. Le principe de la première méthode est d'exprimer la fonction d'onde de l'électron comme produit de fonctions de Bloch et de fonctions enveloppes. Les fonctions enveloppes varient à l'échelle de l'hétérostructure considérée, alors que les fonctions de Bloch ont pour période la cellule unitaire. Les méthodes de type atomistique [25] tiennent compte du nombre fini d'atomes dans la structure, mais restent difficile à mettre en oeuvre numériquement compte tenu du nombre élevé d'atomes dans la boîte. Dans cette thèse nous utiliserons la méthode de masse effective à une seule bande [22]. Dans ce cadre, les états propres s'écrivent :

$$\phi(\mathbf{r}) = u_{n,0}(\mathbf{r})\psi(\mathbf{r}) \quad (1.1)$$

où  $u_{n,0}$  est la fonction de Bloch de centre de zone (périodique à l'échelle de la cellule élémentaire) et  $\psi$  la fonction enveloppe (lentement variable).

La méthode  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  permet d'exprimer la masse effective  $m^*$  d'une bande  $n$  non dégénérée pour un semi-conducteur massif [21] :

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m_0} + \frac{2}{m_0^2 k^2} \sum_{n' \neq n} \frac{|\langle u_{n,0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | u_{n',0} \rangle|^2}{E_{n,0} - E_{n',0}} \quad (1.2)$$

où  $m_0$  est la masse de l'électron et  $E_{n,0}$  l'énergie du centre de zone de la bande  $n$ . Pour la masse effective de la bande de conduction, l'élément de matrice dominant est celui faisant intervenir le couplage avec la bande de valence. Étant donné que l'élément de matrice de l'opérateur impulsion dépend peu du matériau, on s'attend à une variation de masse effective entre le matériau de la boîte et celui du GaAs l'entourant en fonction de leurs gaps respectifs. Cependant, on négligera les variations de masse effective entre les deux matériaux. En effet, les mesures de l'effet Zeeman orbital [13, 27] montrent que l'on peut modéliser la masse effective des électrons de conduction par celle du GaAs ( $m_e^* = 0.07m_0$ ). Ceci peut s'expliquer partiellement par le fait que des contraintes et l'interdiffusion ont pour effet de rapprocher le gap de la boîte de celui du GaAs. On utilisera donc la valeur  $m_e^* = 0.07m_0$  dans la suite.

Avec ces hypothèses, l'hamiltonien de la fonction enveloppe s'écrit en coordonnées cylindriques  $(z, \rho, \theta)$  :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m^{z*}} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{\hbar^2}{2m^{\rho*}} \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \rho \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \right) + V(\mathbf{r}) \quad (1.3)$$

où  $m^{z*}$  et  $m^{\rho*}$  sont les masses effectives pour le mouvement selon l'axe de croissance  $z$  ou dans le plan respectivement.

On modélise la boîte par un cône tronqué, délimitant un volume à l'intérieur duquel la composition est supposée homogène (voir figure 1.2). Le potentiel de confinement  $V(\mathbf{r})$  est pris nul en dehors de la boîte et vaut  $-V_0$  à l'intérieur<sup>1</sup>. La boîte

<sup>1</sup>Ce type de modélisation ne reflète pas tout à fait la réalité : on s'attend en effet à ce que la composition ainsi que les contraintes varient de manière continue à l'intérieur de la boîte. Mais celles-ci ne sont pas connues de manière précise.

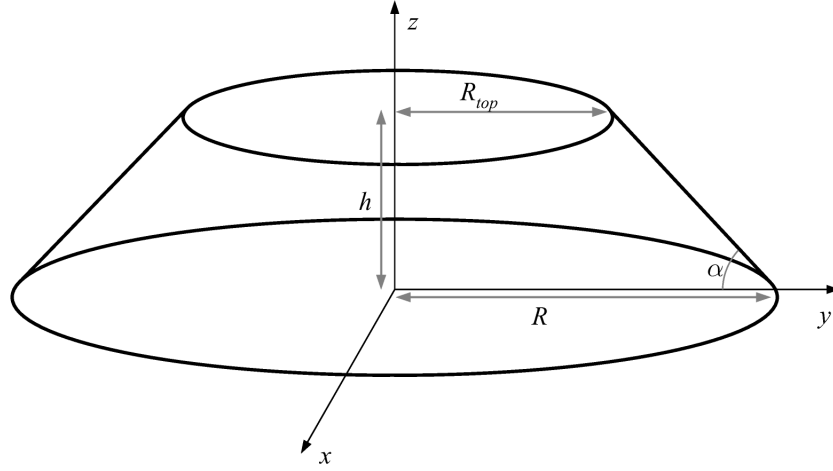


FIG. 1.2: Modélisation d'une boîte quantique en forme de cône tronqué :  $R$  est le rayon de la base,  $h$  la hauteur, et  $R_{top}$  le rayon de la face supérieure. On désigne par  $\alpha$  l'angle à la base du cône ( $\tan \alpha = h/(R - R_{top})$ ).  $d$  est l'épaisseur de la couche de mouillage (non-montrée ici).

repose sur une couche de mouillage bidimensionnelle d'épaisseur  $d$ , dont le potentiel est aussi pris égal à  $-V_0$ . Ce potentiel  $V_0$  correspond au décalage de bande entre le GaAs à l'extérieur et le matériau  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  à l'intérieur de la boîte. En effet, le matériau à l'intérieur de la boîte ne peut pas être assimilé à du InAs massif. D'une part, de l'interdiffusion a généralement lieu pendant le processus de croissance. D'autre part, l'InAs subit une contrainte de la part du GaAs qui l'entoure : la contrainte imposée par le GaAs n'est relaxée que partiellement lors de la formation des îlots, la paramètre de maille du matériau à l'intérieur de la boîte se situe donc quelque part entre celui du GaAs et celui d'InAs.

Pour les bandes de valence, on observe une levée de dégénérescence entre trous lourds et trous légers due aux contraintes biaxiales : InAs est comprimé dans le plan  $(x,y)$  alors que la contrainte est relaxée selon l'axe  $z$ . Dans cette thèse on considérera uniquement les états de trous lourds, qui seront calculés avec une masse effective de  $m_h^p = 0.22m_0$  dans le plan et de  $m_h^z = 0.34m_0$  selon l'axe  $z$ .

### 1.3.1 Méthode variationnelle

Nous utilisons la méthode variationnelle avec des fonctions d'essai gaussiennes. Ces solutions approchées donnent des résultats assez proches des solutions numériques pour les confinements utilisés [28, 29]. De plus, les fonctions gaussiennes permettront des calculs semi-analytiques dans la suite. Comme le potentiel de confinement a une symétrie cylindrique d'axe  $z$ , l'hamiltonien commute avec l'opérateur  $L_z$ , moment cinétique selon  $z$ . Les boîtes ayant une extension beaucoup plus grande dans le plan que verticalement (typiquement diamètre de 20 nm et hauteur de 4 nm), les

## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

premiers états excités ne possèdent pas de nœud selon  $z$ . Pour les premiers niveaux, ces fonctions sont de la forme :

- l'état fondamental est de symétrie  $s$ , c'est à dire état propre  $L_z = 0$

$$\psi_s = \frac{1}{\sqrt{\pi^{3/2}\sigma_s\beta_s^2}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_s^2} - \frac{(z - z_{0s})^2}{2\sigma_s^2}\right) \quad (1.4)$$

- les premiers états excités sont de symétrie  $p$ , avec une dégénérescence égale à deux ( $L_z = \pm 1$ ) :

$$\psi_{p\pm} = \frac{\rho}{\sqrt{\pi^{3/2}\sigma_p\beta_p^4}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\beta_p^2} - \frac{(z - z_{0p})^2}{2\sigma_p^2}\right) e^{\pm i\theta} \quad (1.5)$$

On peut réexprimer ces états  $p$  dans une base faisant apparaître les axes  $x$  et  $y$  :

$$\psi_{p_x} = \frac{\psi_{p_+} + \psi_{p_-}}{\sqrt{2}} = \frac{\sqrt{2}x}{\sqrt{\pi^{3/2}\sigma_p\beta_p^4}} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2\beta_p^2} - \frac{(z - z_{0p})^2}{2\sigma_p^2}\right) \quad (1.6)$$

$$\psi_{p_y} = \frac{\psi_{p_+} - \psi_{p_-}}{\sqrt{2}i} = \frac{\sqrt{2}y}{\sqrt{\pi^{3/2}\sigma_p\beta_p^4}} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2\beta_p^2} - \frac{(z - z_{0p})^2}{2\sigma_p^2}\right) \quad (1.7)$$

Des surfaces d'isoprobabilité de ces fonctions d'onde sont représentées sur la figure 1.3. Un spectre d'absorption intrabande est représenté sur la figure 1.4. On observe une levée de dégénérescence de quelques meV des états  $p$  correspondant aux axes cristallographiques  $[0\bar{1}1]$  et  $[011]$ . Ceci peut s'expliquer par un allongement des boîtes dans la direction  $[0\bar{1}1]$  (par exemple une forme elliptique). Mais ceci peut aussi s'expliquer par des effets piezo-électriques [24, 30] ou atomistiques [31]. La question de l'origine de cette anisotropie reste actuellement ouverte. Dans cette thèse, les calculs électroniques seront effectués pour une boîte à symétrie cylindrique, la levée de dégénérescence anisotrope étant introduit de manière perturbative (la levée de dégénérescence étant faible devant la séparation entre les couches  $s$  et  $p$ ). En l'absence de champ magnétique, les états propres sont  $p_x, p_y$  où les axes  $x, y$  correspondront aux axes cristallographiques  $x = [0\bar{1}1]$  et  $y = [011]$ .

Suivant la taille et la composition de la boîte, il existe des états excités de plus haute énergie, auxquels nous ne nous intéresserons pas dans cette thèse. L'énergie nécessaire pour exciter les niveaux de type  $d$  est de l'ordre du double de celles des niveaux  $p$  [28, 29].

### 1.3.2 Energies des niveaux confinés

Nous étudions ici l'énergie des niveaux confinés de plus basse énergie, c'est à dire les niveaux  $s$  et  $p$ . La figure 1.5 représente l'énergie des niveaux  $s$  et  $p$  de la bande

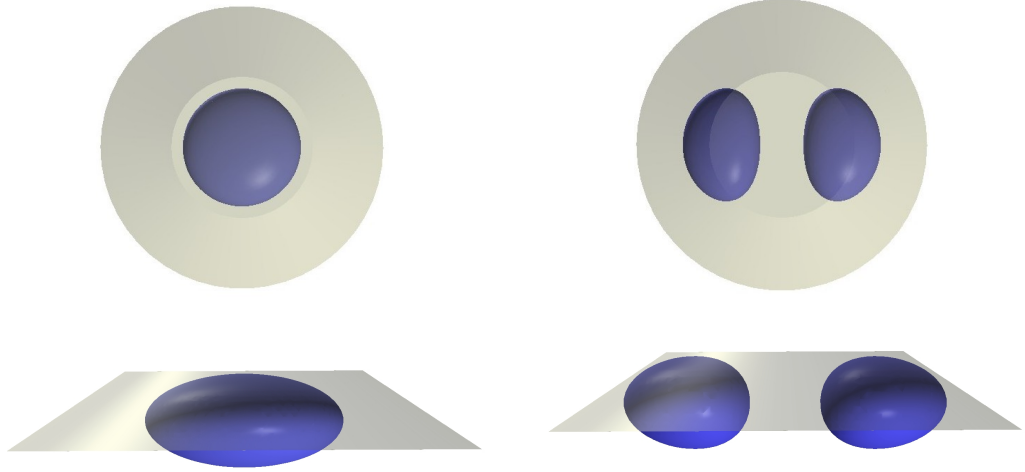


FIG. 1.3: Surfaces d'isoprobabilité de présence de l'électron pour les états  $s$  (à gauche) et  $p_x$  (à droite) vues de dessus dans le plan  $(x,y)$  en haut et vues dans le plan  $(x,z)$  en bas. La boîte quantique est représentée en gris.

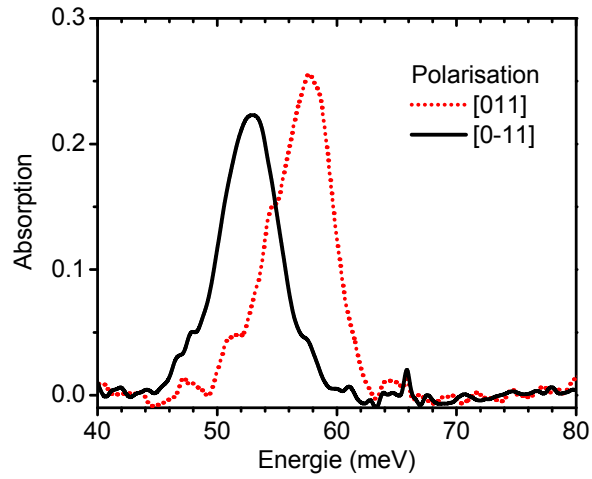


FIG. 1.4: Spectre d'absorption intrabande (de l'échantillon étudié dans le chapitre 5) pour des polarisations suivants  $x = [0\bar{1}1]$  (ligne pleine) et  $y = [011]$  (ligne pointillée).

## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

---

de conduction en fonction du rayon  $R$ , de la hauteur  $h$ , et de la composition  $x$ . Pour chaque courbe en fonction d'une variable, les deux autres variables sont fixées aux valeurs suivantes : rayon à la base  $R = 120\text{\AA}$ , hauteur  $h = 40\text{\AA}$  et composition  $x = 0.5$ . L'épaisseur de la couche de mouillage est  $d = 7\text{\AA}$ . Le rayon de la face supérieure est pris égal à la moitié de celui de la base  $R_{top} = R/2$ . Les niveaux sont d'autant plus confinés que les dimensions de la boîte sont grandes. Les niveaux  $p$  sont d'autant plus sensibles au rayon étant donné qu'ils comportent un nœud dans le plan. Ainsi l'énergie de transition  $s$ - $p$  diminue avec l'augmentation du rayon.

### 1.3.3 Interaction coulombienne

Pour les états à plusieurs particules, l'interaction coulombienne est prise comme une perturbation : ses éléments de matrice sont calculés dans la base des états à une particule (électron ou trou). Pour une paire de particules (électron-trou ou électron-électron), les éléments diagonaux du couplage coulombien sont de l'ordre de 20 meV, ce qui est bien inférieur à l'énergie de confinement due aux décalages de bandes (de l'ordre de la centaine de meV sur la figure 1.5).

Pour une paire électron-trou, l'interaction attractive se traduit par un abaissement de l'énergie. L'attraction est la plus forte lorsque électron et trou sont dans les niveaux fondamentaux  $s$  qui possèdent la plus petite extension spatiale. Les termes diagonaux d'interaction coulombienne pour des paires électron-trou sont reportées dans le tableau 1.6 pour le jeu de paramètre ( $R = 120\text{\AA}$ ,  $h = 40\text{\AA}$ ,  $d = 7\text{\AA}$ ,  $R_{top} = R/2$ ,  $x = 0.5$ ).

Les termes non-diagonaux sont de l'ordre de quelques meV. Nous verrons leur importance pour les boîtes à 2 électrons dans le chapitre 4.

### 1.3.4 Modélisation des paramètres des boîtes

Nous nous intéressons ici à la modélisation des dimensions (rayon  $R$  et hauteur  $h$ ) et de la composition  $x$  d'une boîte quantique  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  à partir des mesures des énergies de transition intrabande et interbande. En effet, ces paramètres sont essentiels au calcul des fonctions d'ondes des états confinés. Cependant, les dimensions ne sont connues que de manière approximative, à partir de mesures d'imageries (AFM,STM) effectuées sur des boîtes qui ne sont pas forcément identiques à celles étudiées expérimentalement. D'autre part, on ne connaît pas précisément les caractéristiques du matériau contenu dans la boîte : la composition  $x$ , qui dépend de l'interdiffusion lors de la croissance des boîtes, n'est pas connue ; d'autre part, les contraintes imposées par GaAs modifient complètement les énergies de bande.

Lorsque l'on dispose de mesures sur les énergies interbandes, on peut en déduire des informations sur les décalages de bandes respectifs des électrons et des trous. Dans notre modélisation des propriétés du matériau dans la boîte, on utilise deux paramètres : le gap  $E_{g,i}$  du matériau dans la boîte, et le ratio  $Q$  des déca-

### 1.3. Les états électroniques

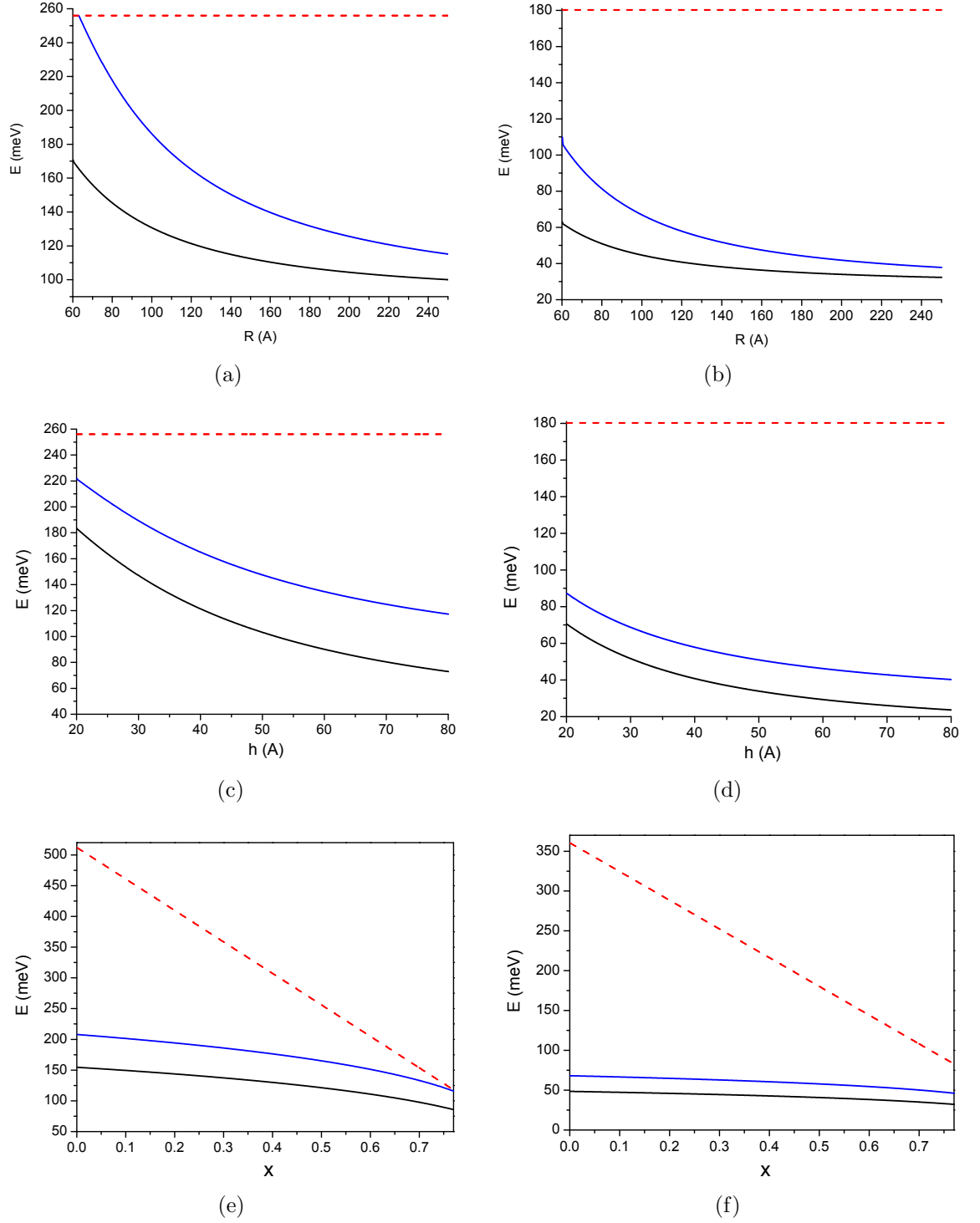


FIG. 1.5: Energie des deux premiers niveaux  $s$  et  $p$  pour les niveaux d'électrons (à gauche) et de trous (à droite) en fonction du rayon [(a) et (b)], de la hauteur [(c) et (d)], et de la composition [(e) et (f)]. La ligne pointillée indique le décalage de bande. Pour chaque variable ( $R, h$ , ou  $x$ ), les deux autres paramètres sont fixés parmi  $R = 120\text{\AA}$ ,  $h = 40\text{\AA}$  et  $x = 0.5$



## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

Paire électron-trou	$s^e s^h$	$s^e p_x^h$	$p_x^e s^h$	$p_x^e p_x^h$	$p_x^e p_y^h$
Interaction coulombienne (meV)	-22.7	-19.6	-18.7	-19.3	-16.2

FIG. 1.6: Termes diagonaux de l'interaction coulombienne pour une paire électron-trou calculé pour les paramètres de boîte  $R = 120\text{\AA}$ ,  $h = 40\text{\AA}$ ,  $d = 7\text{\AA}$ ,  $R_{top} = R/2$  et  $x = 0.5$ .

lages de bandes (offset) pour électrons et trous lourds. Le gap du GaAs massif est de  $E_{g,o} = 1519\text{meV}$ . Le gap  $E_{g,i}$  de  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  est pris comme paramètre d'ajustement, qui dépend de la composition  $x$  et des contraintes. Par simplicité, on prendra une interpolation linéaire entre les gaps des deux matériaux  $E_{g,i} = xE_{g,o} + (1-x)E_{g,\text{InAs}}$ <sup>2</sup>. Les décalages de bande sont pris tel que  $V_0^e = Q(E_{g,o} - E_{g,i})$  pour les électrons et  $V_0^h = (1 - Q)(E_{g,o} - E_{g,i})$  pour les trous. En fonction de la quantité de données expérimentales,  $Q$  sera soit fixé à la valeur  $Q = 0.60$  (ce qui correspond approximativement aux valeurs mesurées pour les puits quantiques [32]), soit pris aussi comme paramètre d'ajustement.

Les mesures dont on dispose sont généralement :

- L'énergie de transition  $E_{sp}$  entre les niveaux de conduction  $s$  et  $p$ .
- L'énergie de photoluminescence interbande  $E_0$ .
- Éventuellement, à partir de la photoluminescence d'excitation (PLE), la différence d'énergie entre l'exciton fondamental et le premier niveau excité optiquement actif  $E_1 - E_0$ .

La figure 1.7 représente les variations dans l'espace énergie de PL - énergie intrabande pour chacune des variables  $R$ ,  $h$  et  $x$  (pour chaque variable, les deux autres paramètres sont fixés parmi  $R = 120\text{\AA}$ ,  $h = 40\text{\AA}$  et  $x = 0.5$ ). On s'aperçoit que l'énergie de PL dépend surtout de la composition (ligne pleine) et de la hauteur (ligne pointillée), alors que l'énergie intrabande  $s$ - $p$  dépend essentiellement du rayon (ligne tiretée). De plus, grâce aux images AFM et STM [33] (effectuées sur des boîtes obtenues dans des conditions de croissance similaires à celles étudiées dans cette thèse), on a une idée des dimensions approximatives des boîtes. Les dimensions employées dans notre modélisation doivent être compatibles avec ces mesures : le diamètre doit être aux alentours de 20 ou 30 nm, alors que la hauteur doit être comprise entre 2 et 6 nm. Ainsi, grâce aux données expérimentales de ces différentes énergies pour un même échantillon, on peut modéliser approximativement les caractéristiques moyennes des boîtes de cet échantillon.

<sup>2</sup>En réalité, le gap dépend aussi fortement des contraintes. Par conséquent, le paramètre  $x$  de notre modélisation n'est pas la composition réelle de la boîte mais plutôt un paramètre phénoménologique.

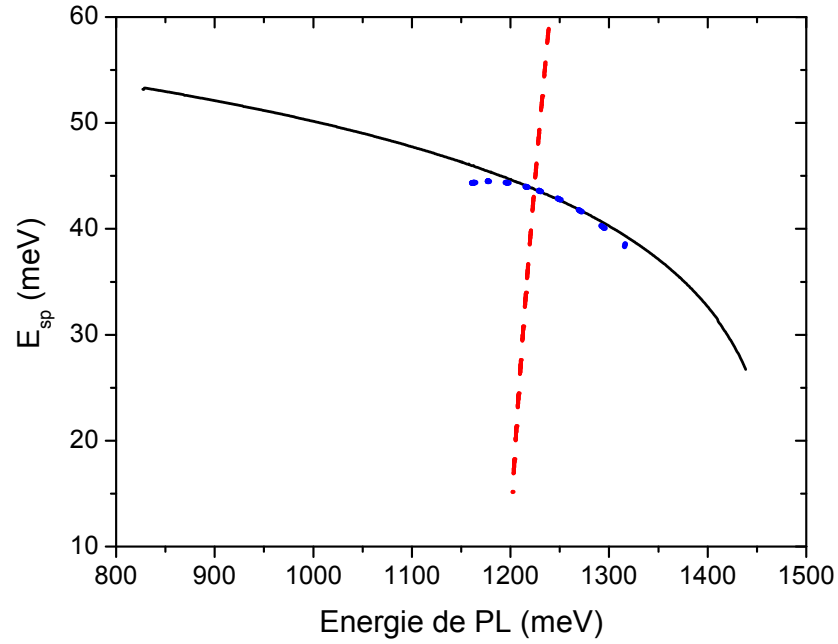


FIG. 1.7: Évolution des énergies de transition intrabande de conduction et interbande avec le rayon (ligne rouge tiretée), hauteur (ligne bleue pointillée), et composition (ligne noire pleine).

## 1.4 Transitions optiques

On distingue deux types de transitions optiques dans les semi-conducteurs : de bande à bande (interbande) ou à l'intérieur d'une même bande (intrabande). On emploie l'approximation dipolaire électrique, étant donné que les longueurs d'ondes des photons impliqués sont dans les deux cas très grandes devant les dimensions des fonctions d'onde (de Bloch ou enveloppe).

### 1.4.1 Transitions intrabandes

Dans ce cas, la partie atomique de la fonction de Bloch est conservée. La force d'oscillateur est proportionnelle au couplage dipolaire entre les fonctions enveloppes :

$$OS_{i \rightarrow f} = \frac{2m^*}{\hbar^2} (E_f - E_i) |\langle i | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{r} | f \rangle|^2 \quad (1.8)$$

où  $\boldsymbol{\varepsilon}$  est le vecteur unitaire de polarisation de la lumière.

On remarque qu'une onde polarisée selon  $x$  ou  $y$  excitera uniquement la transition  $s$ - $p_x$  ou  $s$ - $p_y$  respectivement.

## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

---

**Temps de vie radiatif** Le temps de vie radiatif intrabande d'un état excité est donné par la formule :

$$\frac{1}{\tau_{f \rightarrow i}^{rad}} = \frac{e^2 n \omega^2}{6\pi \varepsilon_0 m^* c^3} OS_{i \rightarrow f} \quad (1.9)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction,  $c$  la célérité de la lumière dans le vide. Ce temps est de l'ordre de quelques microsecondes pour les transitions intrabandes étudiées dans l'infra-rouge lointain. Ce processus de relaxation radiatif restera négligeable puisque nous verrons que la relaxation non-radiative est plusieurs ordres de grandeurs plus rapide.

### 1.4.2 Transitions interbandes

Les transitions interbandes font intervenir le couplage dipolaire entre les parties atomiques des fonctions d'onde de valence  $v$  et de conduction  $c$ . Si l'on considère la transition entre des états  $|v, \psi_h\rangle$  et  $|c, \psi_e\rangle$  (fonction atomique, fonction enveloppe), la force d'oscillateur s'écrit :

$$OS = f_{cv} |\langle \psi_e | \psi_h \rangle|^2 \quad (1.10)$$

avec  $f_{cv} = 2 |\langle c | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | v \rangle|^2 / (m_0 \hbar \omega)$

La force d'oscillateur interbande fait intervenir le produit scalaire des fonctions enveloppes de l'électron et du trou. Seules les paires électron-trou où les fonctions d'ondes de l'électron et du trou ont la même symétrie ( $s^e s^h$ ,  $p_x^e p_x^h$ ,  $p_y^e p_y^h, \dots$ ) sont optiquement actives.

## 1.5 Interaction électron-phonon

On supposera les phonons massifs, ayant les propriétés du GaAs (nous verrons le cas du ternaire InGaAs dans le chapitre 3).

A l'interface entre les deux matériaux, il peut y avoir des phénomènes de réflexion partielle des phonons, ce qui peut conduire à la présence de modes de phonons localisés. Cependant, les propriétés des matériaux étant voisines, on s'attend à ce que ce type d'effets soit négligeable.

Dans cette section, on rappelle les différentes interactions électron-phonon ayant lieu dans les semi-conducteurs, dont les conséquences pour des niveaux confinés dans les boîtes quantiques seront étudiées dans les chapitres suivants.

### 1.5.1 Phonons acoustiques

#### 1.5.1.1 Potentiel de déformation

Les vibrations acoustiques longitudinales de grandes longueurs d'ondes correspondent à des ondes de compression et de dilatation dans le cristal. Or, l'énergie des

niveaux électroniques est sensible à ces variations relatives de volume, ce qui peut être exprimé via le potentiel de déformation. Ceci donne lieu à l'interaction entre porteurs et phonon-LA que nous décrivons ici.

En présence de phonons LA, le déplacement  $\mathbf{u}$  d'un atome situé en  $\mathbf{r}$  par rapport à sa position d'équilibre est donné par

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{\hbar}{2NV\rho\omega} \right)^{1/2} (a_{\mathbf{q}} e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} + a_{\mathbf{q}}^+ e^{-i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}-\omega t)}) \mathbf{e}_{\mathbf{q}} \quad (1.11)$$

où  $\mathbf{e}_{\mathbf{q}}$  est le vecteur polarisation du phonon égal à  $\mathbf{q}/q$  pour les vibrations longitudinales.

Pour un matériau massif, le potentiel de déformation volumique  $D_n$  pour une bande  $n$  est défini par [21] :

$$\delta E_n = D_n \frac{\delta V}{V} \quad (1.12)$$

où  $\delta V$  est la variation locale du volume  $V$  (engendrée ici par la vibration acoustique). Ainsi, la variation d'énergie de la bande considérée est égale au produit de ce potentiel de déformation volumique par la variation de volume relative.

Or, pour des phonons-LA de grands vecteurs d'ondes, la variation relative de volume est donnée par la divergence du déplacement des atomes :

$$\delta V/V = \nabla \cdot \mathbf{u} \quad (1.13)$$

On en déduit l'expression de l'hamiltonien correspondant[21] :

$$H_d = D_n \sum_{\mathbf{q}} \sqrt{\frac{\hbar q}{2NV\rho c_s}} (a_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} + a_{\mathbf{q}}^+ e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}) \quad (1.14)$$

Dans la suite de cette thèse, on utilisera les valeurs correspondant au GaAs massif :  $D_c = -7.2$  eV pour les électrons et  $D_c = -1.2$  eV pour les trous lourds (valeurs recommandées dans la revue [32]). La vitesse du son sera supposée isotrope et prise égale à  $c_s = 5000$  m/s (correspondant environ à la valeur moyenne dans GaAs). Pour la masse volumique, on prendra également celle du GaAs  $\rho = 5.32$  g/cm<sup>3</sup>.

### 1.5.1.2 Effet piézoélectrique

Dans les matériaux n'ayant pas de symétrie d'inversion, l'effet piézoélectrique décrit le fait qu'une contrainte peut induire un champ électrique et vice-versa. Cet effet entraîne un couplage entre phonons de grands vecteurs d'ondes et les électrons, décrit par l'hamiltonien [21, 34] :

$$H_{\text{piezo}} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho\omega_{\mathbf{q}\alpha}}} e A_{\mathbf{q}\alpha} (a_{\mathbf{q}\alpha} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} + a_{\mathbf{q}\alpha}^+ e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}) \quad (1.15)$$

$$A_{\mathbf{q}\alpha} = \frac{q_i q_k}{q^2} \beta_{ijk} v_{\mathbf{q}\alpha}^j$$

## Chapitre 1. Les boîtes quantiques de semi-conducteurs : présentation

où  $\alpha$  désigne la polarisation de l'onde acoustique (longitudinal ou transverse) de vecteur d'onde  $\mathbf{q}$  selon le vecteur unitaire  $v_{\mathbf{q}\alpha}$ . Pour un cristal à symétrie cubique sans centre d'inversion, les seuls composantes non-nulles du tenseur  $\beta_{ijk}$  sont celles où les 3 indices sont différents, et sont égales entre elles :  $\beta_{xyz} = \beta_{xzy} = \dots = h_{14}$ . Pour GaAs,  $eh_{14} = 1.2 \times 10^7$  eV/cm.

Le couplage aux phonons acoustiques par effet piézoélectrique n'est important que pour les très faibles vecteurs d'ondes. Dans ce mémoire, les effets du potentiel de déformation seront souvent dominants étant donné que les énergies en jeu seront presque toujours supérieures au meV.

### 1.5.2 Phonons optiques

Dans un matériau polaire, les phonons-LO de grandes longueurs d'onde correspondent à un déplacement relatif des atomes de charge opposée d'une même cellule unitaire. Ceci entraîne une polarisation macroscopique. Le champ électrique créé s'écrit[21] :

$$\mathbf{E} = F \mathbf{u}_{\text{LO}} \quad (1.16a)$$

$$F = \sqrt{\frac{N\mu\omega_{\text{LO}}^2}{\epsilon_0} \left( \frac{1}{\epsilon_r(\infty)} - \frac{1}{\epsilon_r(0)} \right)} \quad (1.16b)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide,  $\epsilon_r(0)$  et  $\epsilon_r(\infty)$  sont les constantes diélectriques à basse et haute fréquence,  $\mu$  est la masse réduite de la cellule primitive ( $1/\mu = 1/M_1 + 1/M_2$  où  $M_1$  et  $M_2$  sont les masses des deux atomes), et  $u_{\text{LO}}$  est le déplacement relatif des deux atomes de charge opposée d'une cellule élémentaire :

$$\mathbf{u}_{\text{LO}}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{\hbar}{2N\mu\omega_{\text{LO}}} \right)^{1/2} (a_{\mathbf{q}} e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)} + a_{\mathbf{q}}^{\dagger} e^{-i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)}) \mathbf{e}_{\mathbf{q}} \quad (1.17)$$

Le potentiel électrique  $\phi$  vérifiant  $\mathbf{E} = \nabla\phi$ , l'énergie potentielle ressentie par un électron est  $H_f = -e\phi = -ieFu_{\text{LO}}/q$ ,

Par conséquent l'hamiltonien de Fröhlich s'écrit[21] :

$$H_f = \sum_{\mathbf{q}} \frac{iC_f}{q} (a_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} - a_{\mathbf{q}}^{\dagger} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}) \quad (1.18)$$

$$C_f = e \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\text{LO}}}{2NV\epsilon_0} \left( \frac{1}{\epsilon_r(\infty)} - \frac{1}{\epsilon_r(0)} \right)} \quad (1.19)$$

En utilisant la relation de Lyddane-Sachs-Teller  $\epsilon_r(0)/\epsilon_r(\infty) = \omega_{\text{LO}}^2/\omega_{\text{TO}}^2$ , on peut également exprimer cette constante sous la forme :

$$C_f = e \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0\epsilon_r(\infty)\omega_{\text{LO}}} (\omega_{\text{LO}}^2 - \omega_{\text{TO}}^2)} \quad (1.20)$$

La constante de Fröhlich sans dimension

$$\alpha_F = \frac{e^2}{\hbar\epsilon_0} \sqrt{\frac{m^*}{2\hbar\omega_{\text{LO}}}} \left( \frac{1}{\epsilon_r(\infty)} - \frac{1}{\epsilon_r(0)} \right) \quad (1.21)$$

est souvent utilisée dans la littérature afin de caractériser la force de ce couplage<sup>3</sup>.

---

<sup>3</sup>Cependant, nous verrons que son emploi n'est pas très pertinent dans le cas des boîtes quantiques puisqu'elle fait apparaître la masse effective de manière artificielle. Mis à part dans le chapitre 2, nous calculerons  $C_f$  à partir de l'équation 1.20, qui ne fait intervenir que les fréquences des phonons optiques et la constante diélectrique.



# Chapitre 2

## Polarons électroniques et excitoniques

Dans ce chapitre, nous étudions l'interaction entre les niveaux électroniques discrets d'une boîte quantique et les phonons optiques longitudinaux. Il a été montré, aussi bien expérimentalement [13, 27] que théoriquement [35], qu'il y a un couplage fort entre électrons et phonons-LO. Jusqu'ici, les preuves expérimentales proviennent essentiellement de mesures de magnéto-transmission faisant intervenir des transitions  $s$ - $p$  de la bande de conduction de boîtes dopées  $n$  [13, 27] ou de la bande de valence de boîtes dopées  $p$  [36]. Cette interaction ne peut être traitée de façon perturbative, comme c'est souvent le cas dans les structures de plus grande dimensionnalité. Le traitement non-perturbatif donne naissance à des quasi-particules mixtes électrons-phonons appelées polarons. Nous étudierons d'abord les effets du couplage de Fröhlich sur les électrons de la bande de conduction : nous montrerons tout d'abord qu'on est bien régime de couplage fort. Puis nous modéliserons des expériences plus récentes de photoluminescence d'excitation (PLE), qui mettent en évidence l'existence d'effets polarons dans le spectre des niveaux excitoniques.

### 2.1 Le couplage fort électron-phonon-LO

Les états discrets d'une boîte quantique sont couplés à un continuum constitué par les phonons-LO par l'interaction de Fröhlich. Nous verrons que la largeur effective de ce continuum est bien inférieure à la force du couplage en jeu, puisque seuls les phonons-LO de centre de zone, très peu dispersifs, sont couplés efficacement aux états électroniques. Ceci entraîne un régime de couplage fort entre électrons et phonons-LO, et l'émission de phonons-LO n'est pas possible.

Avant cela, on rappellera d'abord brièvement le formalisme permettant de traiter l'interaction d'un état discret avec un continuum de largeur finie, ainsi que les différents types de régimes possibles. On l'appliquera ensuite à l'étude du couplage électron-phonon-LO dans les boîtes.



### 2.1.1 Couplage d'un état discret à un continuum de largeur finie

On rappelle ici brièvement comment traiter l'interaction d'un état discret avec un continuum de largeur finie. On se reportera à la référence [37] pour plus de détails.

On considère un état discret  $|d\rangle$  couplé à un continuum d'états  $|\nu\rangle$ . Les énergies non perturbées sont  $\varepsilon_d$  et  $\varepsilon_\nu$ . Les couplages entre l'état discret et le continuum s'écrivent  $V_\nu = \langle d|V|\nu\rangle$ .

Les solutions, possédant une composante non nulle sur l'état discret, ont une énergie complexe  $z$  satisfaisant les équations auto-consistantes suivantes [37] :

$$z = E - \frac{i}{2}\Gamma(E) \quad (2.1)$$

La partie réelle est donnée par :

$$E = \varepsilon_d + \Delta(E), \quad (2.2)$$

Les fonctions  $\Gamma(E)$  et  $\Delta(E)$  sont définies par :

$$\Gamma(E) = 2\pi \sum_{\nu} |V_\nu|^2 \delta(E - \varepsilon_\nu) \quad (2.3a)$$

$$\Delta(E) = \sum_{\nu} \mathcal{P} \frac{|V_\nu|^2}{E - \varepsilon_\nu} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \mathcal{P} \frac{\Gamma(\varepsilon)}{E - \varepsilon}, \quad (2.3b)$$

où  $\mathcal{P}$  est la partie principale.

La partie réelle de ces solutions peut être déterminée graphiquement par l'intersection de la droite  $E - \varepsilon_d$  avec la courbe  $\Delta(E)$ . La partie imaginaire est alors donnée par la valeur de la fonction  $\Gamma(E)$  à l'abscisse  $E$  d'intersection. Selon qu'il existe une ou plusieurs intersections, on distingue deux régimes de couplages :

- En régime de couplage faible, il y a une seule solution. Si l'énergie de celle-ci se trouve à l'intérieur du continuum, la probabilité de retrouver l'état discret dans son état initial décroît de manière irréversible. Un cas limite est celui du couplage à un continuum plat, entraînant une décroissance exponentielle décrite par la règle d'or de Fermi.
- En régime de couplage fort, on a plusieurs solutions (généralement 3). On observe ce régime lorsque le couplage effectif entre l'état discret et le continuum est plus grand que la largeur effective du continuum. On observe alors un anticroisement lorsque l'énergie de l'état discret varie autour de celle du continuum.

En ce qui concerne l'interaction entre les états discrets d'une boîte quantique et le continuum étroits de phonons-LO, nous allons voir dans la suite que l'on est en pré-

## 2.1. Le couplage fort électron-phonon-LO

sence d'un couplage fort<sup>1</sup>. Par conséquent, l'interaction entre électrons et phonons-LO dans les boîtes quantiques ne peut pas être traitée de manière perturbative. Il est nécessaire d'introduire le concept de polarons.

### 2.1.2 Couplage fort dans les boîtes

On applique ici le formalisme précédent à l'étude du couplage entre un état électronique discret et le continuum formé par la réplique phonon-LO d'un autre état électronique.

Pour les phonons-LO, on prendra une dispersion isotrope au voisinage du centre de zone, correspondant au développement limité à l'ordre 2 en  $q$  :

$$\hbar\omega_{\text{LO}}(q) = \hbar\omega_{\text{LO}} - bq^2 \quad (2.4)$$

avec  $\hbar\omega_{\text{LO}} = 36.7$  meV et  $b = 23.7 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^{-2}$ . Comme on verra plus loin, les phonons de grand vecteur d'onde étant très peu couplés aux porteurs confinés, les détails de la dispersion lorsque  $q$  est grand sont sans importance.

On étudie le cas du couplage entre l'état électronique  $p_x$  à zéro phonon  $|p_x, 0\rangle$  et le continuum formé par la réplique de  $s$  à un phonon  $|s, 1_{\mathbf{q}}\rangle$ . Afin de déterminer la force du couplage, on évalue le carré des éléments de matrices entre ces niveaux :

$$\begin{aligned} |V_{sp}(\mathbf{q})|^2 &= |\langle p_x, 0 | H_f | s, 1_{\mathbf{q}} \rangle|^2 = \frac{C_f^2}{q^2} |\langle p_x | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} | s \rangle|^2 \\ &= C_f^2 \frac{L_{sp}^2}{2} \frac{q_x^2}{q^2} \exp \left( -\frac{(q_x^2 + q_y^2)\beta_{sp}^2}{2} - \frac{q_z^2\sigma_{sp}^2}{2} \right) \end{aligned} \quad (2.5)$$

où l'on a défini les longueurs suivantes :

$$\beta_{sp}^2 = \frac{(\beta_s^2 + \beta_p^2)^2}{2\beta_s^2\beta_p^2} \quad \sigma_{sp}^2 = \frac{(\sigma_s^2 + \sigma_p^2)^2}{2\sigma_s^2\sigma_p^2} \quad (2.6)$$

$$L_{sp} = \frac{\beta_{sp}^4 \sigma_{sp}}{\beta_s \beta_p^2 \sqrt{\sigma_s \sigma_p}} \exp \left( -\frac{(z_{0s} - z_{0p})^2}{2(\sigma_s^2 + \sigma_p^2)} \right) \quad (2.7)$$

Afin de calculer la densité de couplage pour une énergie donnée, on passe en coordonnées sphériques (pour la dispersion isotrope utilisée, l'énergie des phonons optiques ne dépend que du module de  $q$ ).

En coordonnées sphériques où  $\mathbf{q} = (q, \theta, \phi)$ , on pose  $u = \cos \phi$ . On alors  $q_x^2 = q^2(1 - u^2) \cos^2 \theta$ ,  $q_y^2 = q^2(1 - u^2) \sin^2 \theta$  et  $q_z^2 = q^2 u^2$ . La densité de couplage s'écrit en fonction de  $q$  :

<sup>1</sup>Il faut veiller à distinguer cette terminologie de régimes de couplages faibles/forts à celle portant sur la valeur de la constante de Fröhlich  $\alpha_F$ , qui donne lieu à des notions de couplages faibles/forts selon que  $\alpha_F$  soit respectivement inférieur ou supérieur à 1.

$$\begin{aligned}
\rho(q)|V_{sp}(q)|^2 &= \frac{q^2}{(2\pi)^3} \int_{-1}^1 du \int_0^{2\pi} d\phi |\langle p_x, 0 | H_f | s, 1_q \rangle|^2 \\
&= \frac{C_f^2 L_{sp}^2 q^2}{(2\pi)^3} \int_{-1}^1 du \int_0^{2\pi} d\phi \cos^2 \phi (1 - u^2) \exp \left( -\frac{q^2(1 - u^2)\beta_{sp}^2}{2} - \frac{q^2 u^2 \sigma_{sp}^2}{2} \right) \\
&= \frac{C_f^2 L_{sp}^2}{8\pi^2(\beta_{sp}^2 - \sigma_{sp}^2)} \left( \mathcal{D}(\alpha) \frac{1 + 2\alpha^2}{\alpha} - 1 \right) \exp \left( -\frac{q^2 \sigma_{sp}^2}{2} \right)
\end{aligned} \tag{2.8}$$

avec

$$\alpha = q \sqrt{\frac{\beta_{sp}^2 - \sigma_{sp}^2}{2}} \tag{2.9}$$

et  $\mathcal{D}(x)$  est la fonction de Dawson définie par :

$$\mathcal{D}(x) = \int_0^x dt e^{t^2 - x^2} \tag{2.10}$$

En fonction de l'énergie, la densité de couplage s'écrit :

$$\begin{aligned}
\frac{\Gamma(E)}{2\pi} &= \rho(E)|V_{sp}(E)|^2 = \rho(q)|V_{sp}(q)|^2 \left| \frac{dq}{dE} \right| \\
&= \frac{\rho(q)|V_{sp}(q)|^2}{2\sqrt{b(\hbar\omega_{LO} - E)}}
\end{aligned} \tag{2.11}$$

où le vecteur d'onde donné par la dispersion utilisée est  $q = \sqrt{(\hbar\omega_{LO} - E)/b}$ .

La figure 2.1 montre le calcul de cette densité de couplage en fonction de l'énergie. On observe un pic de largeur inférieure à 0.1 meV. La décroissance rapide aux plus faibles énergies est gouvernée par le facteur gaussien en  $e^{-q^2 \sigma_{sp}^2/2}$ .

Sur la figure 2.2, on a représenté  $\Delta(E)$  ainsi que  $E - E_p$  pour deux valeurs  $E_p = E_{LO}$  (résonance) et  $E_p = 45\text{meV}$ . D'après l'équation 2.2, les solutions sont déterminées graphiquement par les abscisses des intersection entre cette droite et  $\Delta(E)$ . Les parties imaginaires correspondantes sont alors déterminées sur la figure 2.2. Le régime de couplage fort est caractérisé par le fait qu'il existe plusieurs (trois) intersections entre les deux courbes. La solution de plus grande énergie (repérée par un cercle pour  $E_p = 36\text{meV}$  et un carré pour  $E_p = 45\text{meV}$  sur la figure 2.2) a une partie imaginaire nulle, puisque son énergie est supérieure à  $E_{LO}$ . Celle de plus basse énergie (repérée par des triangles sur la figure 2.2) a une partie imaginaire non nulle, que l'on peut évaluer sur la figure 2.1(b). Pour les énergies électroniques rencontrées dans la suite, le déplacement négatif est tel que cette partie imaginaire est très faible. Par exemple, pour un état électronique à 45 meV, le temps de vie de l'état polaron de plus basse énergie (à dominante phonon-LO) est supérieur à la dizaine de nanosecondes (solution repérée par un triangle inversé). Ce temps est bien

## 2.1. Le couplage fort électron-phonon-LO

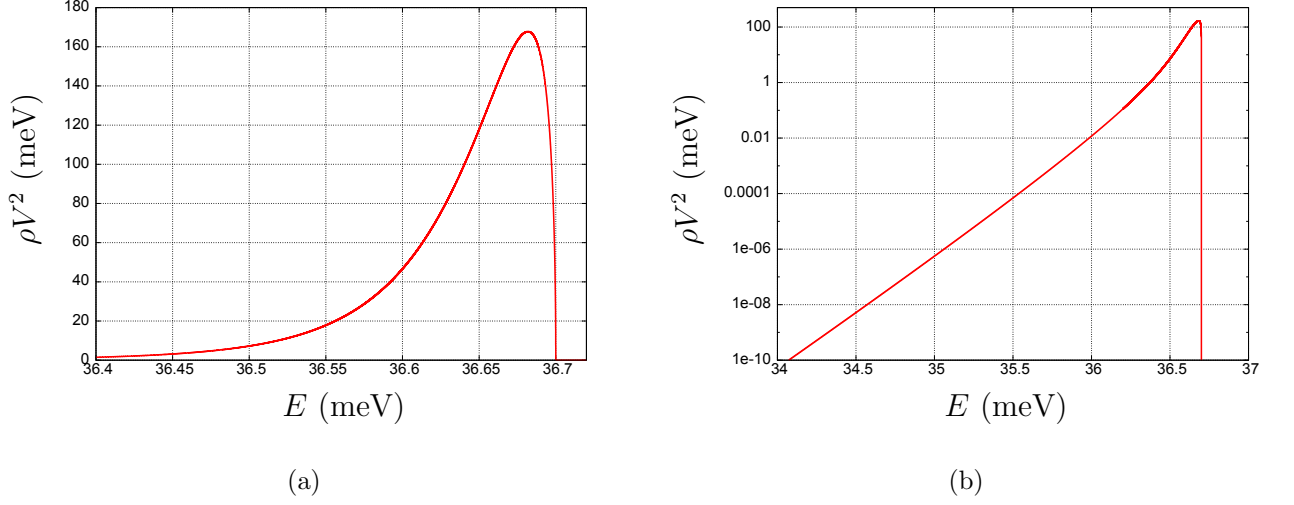


FIG. 2.1: Densité de couplage entre un niveau  $p$  et la réplique phonons-LO du fondamental  $(s,1q)$  de la bande de conduction en fonction de l'énergie en échelle linéaire (a) et en échelle logarithmique sur une plus grande plage d'énergie (b). Les paramètres des boîtes sont identiques à ceux du chapitre 1.

plus grand que le temps de vie qui sera calculé dans le chapitre 3 ; on pourra donc négliger cet effet. Ceci signifie que le phénomène d'émission irréversible de phonons LO est interdit pour les solutions d'énergie supérieure à  $\hbar\omega_{LO}$  et négligeable pour celles d'énergie inférieure à  $\hbar\omega_{LO}$ .

Un couplage effectif  $V_{sp}$  peut être défini par  $V_{sp}^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} dE \Gamma(E)/2\pi$ . Le pic très étroit de  $\Gamma(E)/2\pi$  par rapport au couplage effectif total ( $V_{sp} \sim 4\text{meV}$ ) nous suggère que l'on peut négliger la dispersion des phonons dans la suite. Afin de s'assurer de cette approximation, on a représenté sur la figure 2.2 la fonction  $\Delta_m(E) = V_{sp}^2/(E_{LO} - E)$ , qui correspondrait à la fonction  $\Delta(E)$  si les phonons étaient monochromatiques. Le très bon accord entre ces courbes, qui sont quasiment superposées sur la figure 2.2, montre que les phonons monochromatiques constituent une très bonne approximation.

En résumé, seuls les phonons ayant une longueur d'onde voisine ou supérieure aux dimensions caractéristiques de la boîte peuvent se coupler efficacement aux états électroniques. Cela est dû au facteur en  $e^{iqr}$  intervenant dans le couplage de Fröhlich. Cela signifie que seuls les phonons au voisinage du centre de zone vont intervenir. Or ceux-ci étant très peu dispersif, une très bonne approximation consiste à les considérer comme monochromatiques. Les états polarons résultants peuvent être considérés comme stationnaires, puisque les corrections imaginaires de leurs énergies sont nulles ou bien complètement négligeables. On utilisera ces approximations dans la suite pour étudier différents aspects des états polarons dans les boîtes quantiques, notamment leurs propriétés optiques.

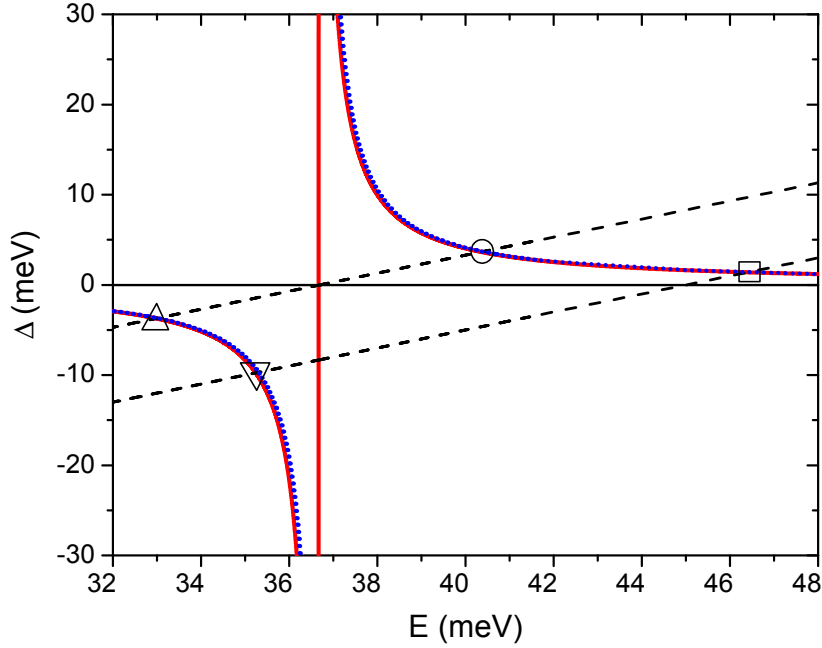


FIG. 2.2: Fonction déplacement  $\Delta(E)$  pour le calcul complet (ligne pleine) et dans l'approximation des phonons monochromatiques  $\Delta_m$  (ligne pointillée). Les droites tiretées ont pour équation  $y = E - \varepsilon_p$  avec  $\varepsilon_p = 36.7$  ou  $45$  meV. Les points d'intersections avec  $\Delta(E)$  sont représentés par des symboles.

## 2.2 Les états polarons dans le cadre de l'approximation des phonons monochromatiques

L'approximation de phonons monochromatiques permet de simplifier grandement les calculs. Nous allons voir d'abord, de manière générale, que pour chaque couple d'états électroniques, le couplage de Fröhlich ne fait intervenir qu'un seul mode discret de phonons-LO. Nous nous intéresserons ensuite au cas particulier du mode de phonon couplant les deux états électroniques  $s$  et  $p$ . On verra ensuite comment traiter l'interaction avec différents modes de phonons.

### 2.2.1 Modes de phonons couplés

On considère deux états électroniques  $i$  et  $j$  (avec éventuellement  $i = j$ ). On étudie les couplages entre l'état discret  $|j, 0\rangle$  à zéro phonon et le continuum plat formé la réplique à 1 phonon de l'état  $i$ ,  $|i, 1_q\rangle$ . Nous allons montrer que ce problème peut se ramener à l'étude d'un système à 2 niveaux.

Pour cela, on introduit un nouveau mode de phonon appelé  $ij$ , défini par ses opérateurs création  $a_{ij}^+$  et annihilation  $a_{ij}$  :

## 2.2. Les états polarons dans le cadre de l'approximation des phonons monochromatiques

$$a_{ij}^{(+)} = \sum_q \frac{\langle i, 1_q | H_f | j, 0 \rangle}{V_{ij}} a_q^{(+)} \quad (2.12)$$

où le couplage effectif  $V_{ij}$  s'écrit :

$$V_{ij} = \sqrt{\sum_q |\langle i, 1_q | H_f | j, 0 \rangle|^2} \quad (2.13)$$

On note  $|n_{ij}\rangle$  l'état où l'occupation de ce mode de phonon est  $n$  ( $|n_{ij}\rangle = \frac{(a_{ij}^+)^n}{\sqrt{n!}} |0\rangle$ ).

On remarque tout d'abord que  $V_{ij}$  est bien la force de couplage effective entre les états  $|j, 0\rangle$  et  $|i, 1_{ij}\rangle$  :

$$\langle i, 1_{ij} | H_f | j, 0 \rangle = \sum_q \frac{\langle i, 1_q | H_f | j, 0 \rangle^* \langle i, 1_q | H_f | j, 0 \rangle}{V_{ij}} = V_{ij} \quad (2.14)$$

De plus, on vérifie que le sous-espace orthogonal au mode de phonon  $ij$  ne couplent pas les états électroniques  $i$  et  $j$  entre eux. En effet, si l'on considère un état de phonon  $\mu$  avec  $a_\mu^+ = \sum_q \alpha_q a_q^+$  orthogonal au mode de phonon  $ij$ , on a :

$$\langle i, 1_\mu | H_f | j, 0 \rangle = \sum_q \alpha_q^* \langle i, 1_q | H_f | j, 0 \rangle = 0 \quad (2.15)$$

la dernière égalité traduisant l'orthogonalité des modes  $\mu$  et  $ij$ .

On a donc montré que la prise en compte du système à 2 niveaux ( $|j, 0\rangle, |i, 1_{ij}\rangle$ ) suffisait pour rendre compte de l'interaction entre  $|j, 0\rangle$  et le continuum  $|i, 1_q\rangle$ .

De manière plus générale, on isole ainsi un seul mode de phonon interagissant pour chaque couple d'états électroniques donné. Si l'on considère  $p$  niveaux électroniques,  $p(p+1)/2$  modes de phonons vont intervenir au maximum. Cependant, le mode couplant les états  $i$  et  $j$  n'est pas forcément orthogonal au mode couplant un autre couple d'états  $k$  et  $l$ . On introduira donc souvent des bases de phonons qui ne sont pas orthogonales.

Parmi les couplages de Fröhlich faisant intervenir les états liés d'une boîte quantique, on peut distinguer d'une manière très générale deux types d'interaction :

- Les couplages diagonaux, c'est à dire qui laissent la partie électronique inchangée.
- Les couplages non-diagonaux, qui couplent des niveaux électroniques différents.

Dans un premier temps, nous étudierons un couplage hors-diagonal entre un niveau  $p$  et la réplique phonon de  $s$ . Les conséquences de ce couplage sont importantes, d'autant plus que ces deux états sont souvent proches de la résonance pour des paramètres de boîtes usuels. On verra dans un deuxième temps comment prendre en compte les couplages diagonaux grâce au formalisme de Huangh-Rhys.

### 2.2.2 Couplages de Fröhlich non-diagonaux

On étudie ici les couplages diagonaux sur l'exemple de l'interaction entre les états  $p$  (on considère par exemple  $p_x$ ) et la réplique à un phonon du niveau  $s$ . Nous verrons notamment dans les chapitres suivants les conséquences de ce couplage sur les propriétés de relaxation.

#### 2.2.2.1 Système à 2 niveaux

Pour les températures rencontrées dans les expériences modélisées par la suite (inférieures à 120K), le facteur de Bose à l'énergie des phonons optiques est négligeable. On considère alors uniquement les niveaux électroniques à zéro phonons, ainsi que les niveaux à 1 phonon-LO auxquels ils sont couplés.

L'interaction entre les niveaux  $|p,0\rangle$  et le continuum  $|s,1_{\mathbf{q}}\rangle$  (considéré comme monochromatique), peut se ramener à l'interaction entre les deux niveaux discrets  $|p,0\rangle$  and  $|s,1_{sp}\rangle$ , où le mode de phonon  $|1_{sp}\rangle$  est défini par :

$$|1_{sp}\rangle = \sum_{\mathbf{q}} \frac{\langle s,1_{\mathbf{q}}|H_f|p,0\rangle}{V_{sp}} |1_{\mathbf{q}}\rangle \quad (2.16)$$

où  $|1_{\mathbf{q}}\rangle$  sont les états de phonon massif, et  $V_{sp} = \sqrt{\sum_{\mathbf{q}} |\langle s,1_{\mathbf{q}}|H_f|p,0\rangle|^2}$  est la force de couplage entre  $|p,0\rangle$  et  $|s,1_{sp}\rangle$ .

L'hamiltonien de ce système à 2 niveaux s'écrit :

$$H = \begin{pmatrix} E_p & V_{sp} \\ V_{sp} & E_s + \hbar\omega_{LO} \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

Les deux états polarons correspondants ( $i=1,2$ ) peuvent s'écrire :

$$|\psi_i\rangle = \alpha_i |p,0\rangle + \beta_i |s,1_{sp}\rangle \quad (2.18)$$

Leurs énergies  $E_i$  sont solutions de

$$(E_i - \hbar\omega_{LO})(E_i - E_{sp}) = V_{sp}^2, \quad (2.19)$$

où  $E_{sp}$  est l'énergie entre les niveaux purement électroniques  $|s\rangle$  et  $|p\rangle$ . L'origine des énergies est prise au niveau fondamental non-couplé  $|s,0\rangle$ . On néglige ici la légère correction énergétique de ce niveau, étant donné qu'il est couplé à des niveaux très éloignés énergétiquement (d'au moins  $E_{sp} + \hbar\omega_{LO}$ ). Pour ce choix d'origine des énergies, les énergies des polarons  $E_i$  correspondent à celles d'excitations par les photons de l'infrarouge lointain :

$$E_i = E_s + \frac{E_{sp} + \hbar\omega_{LO} \pm \sqrt{(E_{sp} - \hbar\omega_{LO})^2 + 4V_{sp}^2}}{2} \quad (2.20)$$

## 2.2. Les états polarons dans le cadre de l'approximation des phonons monochromatiques

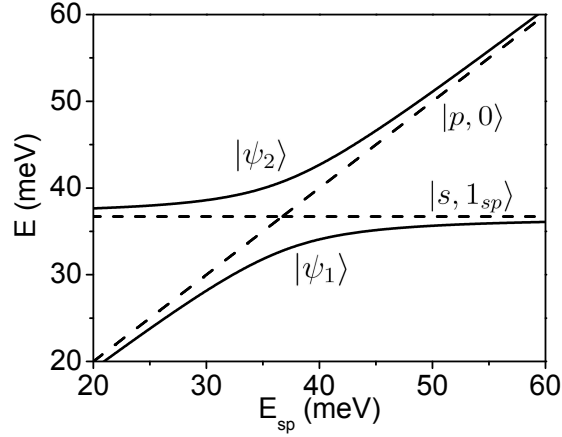


FIG. 2.3: Energies des deux niveaux polarons en fonction de l'énergie de l'état électronique  $p$  (lignes pleines). Les lignes tiretées montrent l'énergie des niveaux non-perturbés.

Le poids des composantes de chacun des polarons  $i$  peut s'exprimer simplement en fonction de leur énergie  $E_i$  :

$$|\alpha_i|^2 = \frac{(E_i - \hbar\omega_{LO})^2}{(E_i - \hbar\omega_{LO})^2 + V_{sp}^2} \quad (2.21a)$$

$$|\beta_i|^2 = \frac{V_{sp}^2}{(E_i - \hbar\omega_{LO})^2 + V_{sp}^2} \quad (2.21b)$$

### 2.2.2.2 Polarons de polarisation $x$ et $y$

En réalité, il faut prendre en compte à la fois les états  $p_x$  et  $p_y$ . Cependant, étant donné que les modes de phonons correspondants  $|1_{sp_x}\rangle$  et  $|1_{sp_y}\rangle$  sont orthogonaux, on est en présence de deux systèmes à 2 niveaux indépendants (comme décrit ci-dessus). Ces niveaux sont représentés sur la figure 2.4. On notera  $|\psi_{i,x}\rangle$  et  $|\psi_{i,y}\rangle$  ( $i = 1,2$ ) les 4 états polarons correspondant :

$$|\psi_{i,x/y}\rangle = \alpha_{i,x/y}|p_{x/y},0\rangle + \beta_{i,x/y}|s,1_{sp_{x/y}}\rangle \quad (2.22)$$

Dans la suite, on choisira de désigner par l'indice 1 les polarons à dominante électronique ( $|\alpha_{1,x/y}|^2 > 1/2$ ), l'indice 2 désignant ceux à dominante phonon-LO ( $|\beta_{2,x/y}|^2 > 1/2$ ), comme indiqué sur la figure 2.4.

### 2.2.2.3 Traitement complet

On étudie ici le cas du couplage de Fröhlich entre  $p$  et  $s$  de manière plus générale : on ne se limite plus à l'occupation 0 ou 1 pour le mode de phonon-LO, et on prend en compte également les termes anti-résonnants. On considère l'hamiltonien  $H =$



## Chapitre 2. Polarons électroniques et excitoniques

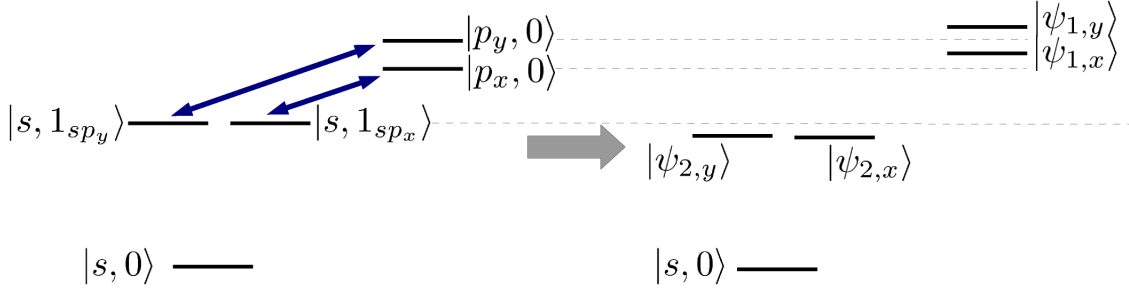


FIG. 2.4: Schéma des couplages de Fröhlich entre les états  $p$  et les répliques phonons de  $s$  (à gauche). Les états polarons obtenus après diagonalisation de l'interaction sont représentés à droite.

$H_0 + H_f^{h-d}$ , où  $H_0 = H_e + H_{ph}$  est la partie non-perturbée et  $H_f^{h-d}$  la partie non-diagonale du couplage de Fröhlich. Dans le sous-espace des niveaux électroniques  $(p, s)$ , il s'écrit :

$$H = \begin{pmatrix} E_p + \hbar\omega_{LO}a_{sp}^+a_{sp} & V_{sp}(a_{sp}^+ + a_{sp}) \\ V_{sp}(a_{sp}^+ + a_{sp}) & E_s + \hbar\omega_{LO}a_{sp}^+a_{sp} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Les fonctions d'ondes  $s$  et  $p$  étant prises réelles, on peut vérifier aisément que  $V_{sp} = \langle s, 1_{sp} | H_f | p, 0 \rangle = \langle s, 0 | H_f | p, 1_{sp} \rangle$ .

On reconnaît ici un hamiltonien de type Jaynes-Cummings, utilisé en optique quantique pour décrire un système atomique à 2 niveaux en couplage fort avec un seul mode d'une cavité optique [38]. On peut distinguer les termes résonnants des termes anti-résonnants. Dans la restriction aux niveaux  $(|p, n_{sp}\rangle, |s, n_{sp} + 1\rangle)$ , on fait apparaître les termes résonnants :

$$H_{\text{résonnant}} = \begin{pmatrix} E_p + n_{sp}\hbar\omega_{LO} & \sqrt{n_{sp} + 1}V_{sp} \\ \sqrt{n_{sp} + 1}V_{sp} & E_s + (n_{sp} + 1)\hbar\omega_{LO} \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

Les termes anti-résonnants s'écrivent dans la base  $(|p, n_{sp} + 1\rangle, |s, n_{sp}\rangle)$  :

$$H_{\text{anti-résonnant}} = \begin{pmatrix} E_p + (n_{sp} + 1)\hbar\omega_{LO} & \sqrt{n_{sp} + 1}V_{sp} \\ \sqrt{n_{sp} + 1}V_{sp} & E_s + n_{sp}\hbar\omega_{LO} \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

Les écarts énergétiques entre niveaux couplés sont  $E_{sp} - E_{LO}$  pour les interactions résonnantes et  $E_{sp} + E_{LO}$  pour celles anti-résonnantes. Lorsque  $E_p$  est comparable à  $\hbar\omega_{LO}$ , on ne gardera que l'interaction entre niveaux quasi-résonnants, c'est à dire séparés de  $E_{sp} - E_{LO}$ . Les termes anti-résonnants peuvent alors être négligés. Par contre, si  $E_{sp}$  devient très petit ou très grand devant  $E_{LO}$ , alors il est important de prendre en compte les termes anti-résonnants, notamment pour évaluer les processus de relaxation.

## 2.2. Les états polarons dans le cadre de l'approximation des phonons monochromatiques

**Termes résonnants** Si on garde seulement les termes résonnants, les états polarons s'écrivent pour  $n \geq 0$  :

$$|\psi_{i,n}\rangle = \alpha_{i,n}|p,n_{sp}\rangle + \beta_{i,n}|s,(n+1)_{sp}\rangle \quad (2.26)$$

alors que l'état  $|s,0\rangle$  reste inchangé.

Les énergies propres de ces états polarons sont :

$$E_{i,n} = E_s + nE_{LO} + \frac{E_{sp} + E_{LO} \pm \sqrt{(E_{sp} - E_{LO})^2 + 4V_{sp}^2(n+1)}}{2} \quad (2.27)$$

On remarque que l'anticroisement est proportionnel à  $\sqrt{n_{sp} + 1}$ .

Leur composantes sont données par :

$$\alpha_{i,n} = \frac{E_i - [E_s + (n+1)E_{LO}]}{\sqrt{(E_i - [E_s + (n+1)E_{LO}])^2 + (n+1)V_{sp}^2}} \quad (2.28)$$

$$\beta_{i,n} = \frac{\sqrt{n+1}V_{sp}}{\sqrt{(E_i - [E_s + (n+1)E_{LO}])^2 + (n+1)V_{sp}^2}} \quad (2.29)$$

A basse température ( $kT \ll E_{LO}$ ), la boîte quantique est initialement dans son état fondamental  $|s,0\rangle$ . Par conséquent, on ne peut exciter optiquement que les polarons de plus basse énergie  $|\psi_{i,0}\rangle$ . Par contre, à température élevée, il faut prendre en compte le facteur d'occupation des niveaux  $|\psi_{i,n}\rangle$ . On pourra éventuellement avoir des transitions optiques entre  $|\psi_{i,n}\rangle$  et  $|\psi_{j,n+1}\rangle$ .

**Polaron fondamental** Les termes résonnants n'affectent pas l'état fondamental  $|s,0\rangle$ . Par contre, les termes anti-résonnants couplent  $|s,0\rangle$  aux états  $|p,1_{sp_x}\rangle$  et  $|p,1_{sp_y}\rangle$ . L'état fondamental est alors de la forme :

$$|\psi_0\rangle = \gamma_0|s,0\rangle + \delta_0|p_x,1_{sp_x}\rangle + \eta_0|p_y,1_{sp_y}\rangle \quad (2.30)$$

Comme  $V_{sp} \ll (E_{LO} + E_{sp_{x/y}})$ , on peut le traiter en perturbation. On a donc  $\gamma_0 \simeq 1$ ,  $\delta_0 \simeq -V_{sp_x}/(E_{LO} + E_{sp_x})$  et  $\eta_0 \simeq -V_{sp_y}/(E_{LO} + E_{sp_y})$ .

### 2.2.3 Couplages de Fröhlich diagonaux

On étudie ici le rôle joué par les couplages de Fröhlich diagonaux. Pour cela, on applique le formalisme de Huangh-Rhys pour les phonons optiques. Nous reviendrons (5.2) de façon détaillée sur ce formalisme pour les phonons acoustiques. Le formalisme de Huangh-Rhys pour un continuum de phonons dispersifs sera traitée dans l'annexe A.

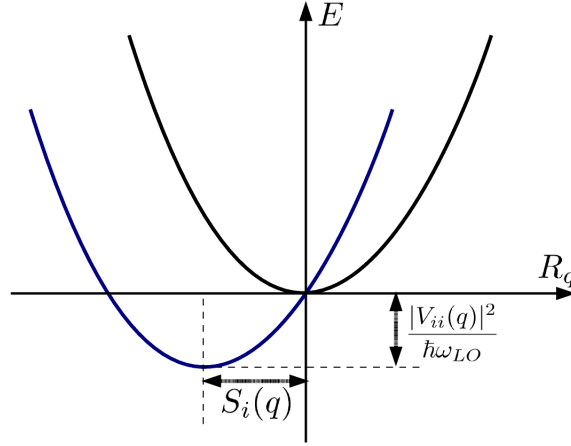


FIG. 2.5: Schéma représentant l'énergie potentielle d'un mode de vibration en fonction de  $R_q$  pour les cas sans couplages et avec couplages de Fröhlich diagonaux.

On considère un seul état électronique  $i$ , couplé aux phonons-LO par les termes de Fröhlich diagonaux. L'hamiltonien du système s'écrit :

$$H = \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{\text{LO}} a_{\mathbf{q}}^{\dagger} a_{\mathbf{q}} + |i\rangle\langle i| \sum_{\mathbf{q}} (V_{ii}(\mathbf{q}) a_{\mathbf{q}} + V_{ii}^{\dagger}(\mathbf{q}) a_{\mathbf{q}}^{\dagger}) \quad (2.31)$$

avec  $V_{ii}(\mathbf{q}) = \langle i, 0_{\mathbf{q}} | H_f | i, 1_{\mathbf{q}} \rangle$ . L'origine des énergies est prise au niveau  $i$  avec zéro phonon.

Afin d'éliminer les termes linéaires en  $a_{\mathbf{q}}$  ou  $a_{\mathbf{q}}^{\dagger}$ , on introduit les opérateurs d'annihilation et de création suivants :

$$b_{ii}^{(+)}(\mathbf{q}) = a_{\mathbf{q}}^{(+)} + \frac{V_{ii}(\mathbf{q})}{\hbar\omega_{\text{LO}}} = a_{\mathbf{q}}^{(+)} + S_i(\mathbf{q}) \quad (2.32)$$

où l'on a défini  $S_i(\mathbf{q}) = V_{ii}(\mathbf{q})/\hbar\omega_{\text{LO}}$ .

L'hamiltonien se réécrit comme :

$$H = \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{\text{LO}} b_{ii}^{\dagger}(\mathbf{q}) b_{ii}(\mathbf{q}) - \sum_{\mathbf{q}} \frac{|V_{ii}(\mathbf{q})|^2}{\hbar\omega_{\text{LO}}} \quad (2.33)$$

L'énergie de l'état électronique  $i$  habillé par les phonons optiques est ainsi décalé vers le rouge de  $-\sum_{\mathbf{q}} |V_{ii}(\mathbf{q})|^2/\hbar\omega_{\text{LO}}$ .

Le niveau fondamental s'écrit (cf. annexe A) :

$$|\widetilde{0_{ii}}\rangle = \exp\left(-\sum_{\mathbf{q}} |S_i(\mathbf{q})|^2/2\right) \exp\left(-\sum_{\mathbf{q}} S_i^{\dagger}(\mathbf{q}) a_{\mathbf{q}}^{\dagger}\right) |0\rangle \quad (2.34)$$

Les états excités s'obtiennent en faisant agir les opérateurs  $b_{ii}^{\dagger}(\mathbf{q})$  sur cet état fondamental. Les états à 1 phonon-LO de vecteur d'onde  $\mathbf{q}$  sont de la forme  $|\widetilde{1_{ii}(\mathbf{q})}\rangle = b_{ii}^{\dagger}(\mathbf{q}) |\widetilde{0_{ii}}\rangle$ .

Afin d'interpréter physiquement ce formalisme, on représente généralement l'énergie potentielle de vibration associée au mode  $\mathbf{q}$ . On définit  $R_{\mathbf{q}} = (a_{\mathbf{q}} + a_{\mathbf{q}}^+)/2$ , qui est l'analogue du déplacement. Sur la figure 2.5, on a représenté schématiquement l'énergie potentielle d'un mode de vibration en fonction de  $R_{\mathbf{q}}$  pour les cas sans interaction et avec interaction. En l'absence d'interaction, l'énergie potentielle est  $\hbar\omega_{\text{LO}}R_{\mathbf{q}}^2$ , alors qu'avec interaction, elle s'écrit  $\hbar\omega_{\text{LO}}(R_{\mathbf{q}} - S_i(\mathbf{q}))^2 - |V_{ii}(\mathbf{q})|^2/\hbar\omega_{\text{LO}}$ . La position d'équilibre est donc déplacée de  $S_i(\mathbf{q})$ , avec un minimum d'énergie abaissé de  $|V_{ii}(\mathbf{q})|^2/\hbar\omega_{\text{LO}}$ . Pour les transitions intrabandes, par exemple entre  $s$  et  $p$ , c'est la différence entre les positions d'équilibre dans les états  $s$  et  $p$  qui interviendra.

En résumé, on peut employer l'interprétation suivante pour ces termes diagonaux : la présence de l'état électronique  $i$  a pour effet de déplacer la position d'équilibre des atomes (à l'intérieur ou au voisinage de la boîte quantique). Ceci est tout à fait analogue à un oscillateur harmonique chargé auquel on ajoute un champ électrique constant.

## 2.3 Les polarons excitoniques

Les transitions optiques interbandes (entre bandes de valence et de conduction) font intervenir des paires électrons-trous qui sont électriquement neutres. Comme le couplage de Fröhlich est d'origine électrostatique, on pourrait s'attendre à des couplages plus faibles entre phonons-LO et excitons. Cependant, comme cela a été prédit par Verzelen *et al.* [39], les excitons et phonons-LO sont également en régime de couplage fort. Ceci a été mis en évidence expérimentalement au LPA par V. Presler (dans le groupe infrarouge lointain) par l'observation d'un anticroisement dans le spectre des niveaux excitoniques lorsqu'un champ magnétique est appliqué le long de l'axe de croissance. La prise en compte des interactions entre paires électrons-trous et les phonons-LO nous a permis de modéliser ces expériences. Après avoir présenté les résultats expérimentaux, on prendra en compte cette expérience, en prenant en compte le couplage fort entre exciton et phonon-LO. On calculera le spectre des polarons excitoniques sous champ magnétique, que l'on comparera aux données expérimentales.

### 2.3.1 Expériences de photo-luminescence d'excitation (PLE)

Durant son travail de thèse [16], Vanessa Preisler a effectué des expériences de photo-luminescence d'excitation (PLE) en champ magnétique. Le principe de la PLE est le suivant : on fixe une énergie de détection  $E_{\text{det}}$  à l'intérieur de la raie large (quelques dizaines de meV) de photo-luminescence (PL) d'un échantillon de boîtes quantiques. Un laser d'énergie accordable  $E_{\text{exc}}$  supérieure à  $E_{\text{det}}$  est utilisé en excitation. Pour une valeur de  $E_{\text{det}}$  fixée, on obtient un spectre de l'intensité

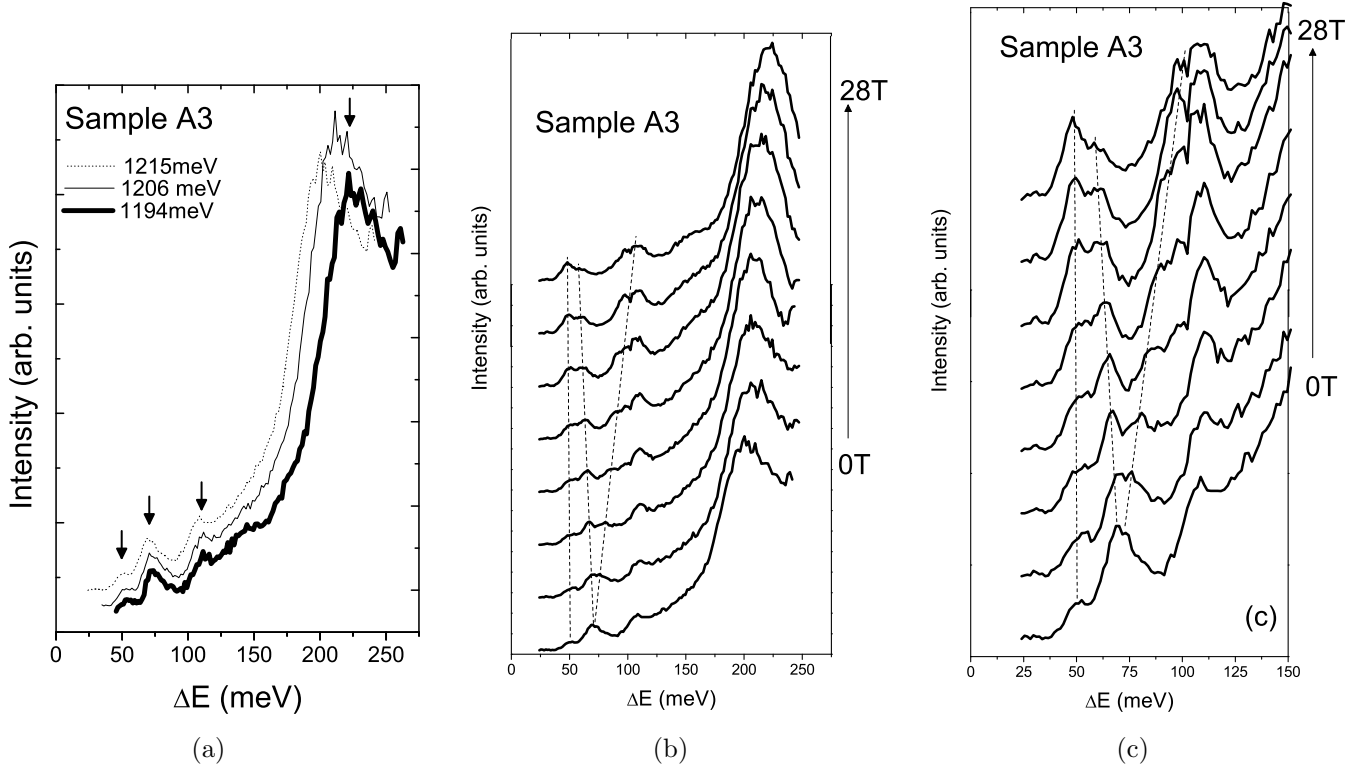


FIG. 2.6: (a) Photoluminescence d'excitation (PLE) à 4K pour différentes énergies d'excitation à 4K. (b) Spectres de Magneto-PL de  $B=0$  à  $B=28$  T tous les 4 Tesla pour une énergie de détection  $E_{dect}=1215$  meV. (c) Zoom sur la partie basse énergie.

du signal détecté, qui peut être tracé en fonction de la différence d'énergie  $\Delta E = E_{exc} - E_{det}$ . Ce spectre donne des informations sur l'absorption des niveaux excités en fonction de leur différence d'énergie avec le fondamental. Afin de pouvoir identifier les différentes raies observées, un champ magnétique vertical est appliqué. L'effet Zeeman orbital, conjointement avec les règles de sélection enveloppe régissant les transitions interbandes, permettent de discriminer les différentes orbitales selon leur projection du moment cinétique  $l_z$ . Ceci est l'analogue excitonique des expériences intrabandes de magnéto-absorption sur des électrons [13, 27] ou sur des trous [36]. Pour plus de détails expérimentaux, on pourra se référer à la thèse de Vanessa Preisler [16].

Les spectres de PLE sont présentés sur la figure 2.6, pour un échantillon présentant un dopage de type  $n$ . Des résultats similaires sont obtenues sur des échantillons non-dopés ou dopés  $p$  [40]. Par conséquent, on considérera dans la partie théorique que les boîtes ne sont pas dopées, étant donné que la résolution ne semble pas suffisante pour avoir accès à des effets dépendants du dopage.

Le pic de PL à 4 K étant centré à environ 1200 meV, les énergies de détection sont prises dans l'intervalle 1190-1217 meV. La figure 2.6(a) montre les spectres de

## 2.3. Les polarons excitoniques

PLE pour des énergies de détection  $E_{\text{det}}=1194, 1206$  et  $1215$  meV. Les mêmes pics sont observés indépendamment de l'énergie de détection, indiqués par des flèches sur cette figure, à  $50$  meV,  $75$  meV, et  $110$  meV. Un pic beaucoup plus important est observé vers  $220$  meV. Ce dernier pic provient de l'excitation de la couche de mouillage. Ceci est confirmé par le fait que son énergie absolue est indépendante de l'énergie de détection, à environ  $E_{\text{exc}} = 1420$  meV. Cette énergie correspond à une couche de mouillage d'une dizaine d'ångströms, soit quelques couches atomiques.

Les trois autres pics sont associés à l'absorption par des états confinés dans la boîte. Un champ magnétique est appliqué selon l'axe  $z$  afin d'étudier ces états liés. Les spectres de PLE pour des champs magnétiques entre  $0$  et  $28$  T sont montrés sur les figures 2.6(b) et 2.6(c). Le pic initialement à  $75$  meV se sépare en deux, ce qui est caractéristique des états  $p$ . Au contraire, l'énergie des pics à  $50$  et  $110$  meV varient très peu en champ magnétique ; ils font donc intervenir des états  $s$  ou  $p_h$ , les trous étant beaucoup moins sensibles au champ magnétique du fait de leur masse effective plus élevée.

La branche descendante du pic à  $75$  meV vient anticroiser le pic à  $50$  meV vers  $20$  T. De plus, on observe un échange de force d'oscillateur : celle du pic initialement à  $75$  meV diminue au profit du pic de plus basse énergie. Ce phénomène d'anticroisement accompagné d'échange de forces d'oscillateur ne peut pas s'expliquer de manière purement électronique (interaction coulombienne par exemple). Dans la suite nous associons ce phénomène à une signature du couplage fort exciton-phonon-LO.

L'énergie du pic à  $220$  meV augmente avec le champ magnétique. C'est bien le comportement attendu pour une transition dans un puits quantique. En utilisant des masses effectives de  $m_e = 0.07m_o$  pour les électrons et  $m_h = 0.22m_o$  pour les trous lourds (valeurs utilisés pour les boîtes), on s'attend à une pente de :

$$\frac{1}{2}\hbar e(m_e^{-1} + m_h^{-1}) = 1.1 \text{ meV T}^{-1} \quad (2.35)$$

Sur le spectre, on mesure une pente d'environ  $0.8 \text{ meV T}^{-1}$ . Cette différence peut provenir d'une variation des masses effectives entre la couche de mouillage et les boîtes quantiques.

### 2.3.2 Modélisation

On souhaite modéliser ce système où un exciton est confiné dans une boîte et soumis à un champ magnétique. L'exciton est composé d'une paire électron-trou, qui interagissent via le couplage coulombien. De plus, on va considérer l'interaction avec les phonons-LO. On utilise donc l'hamiltonien suivant :

$$H = H_e(B) + H_h(B) + V_{e-h} + H_{ph} + H_F, \quad (2.36)$$

avec  $H_e$  et  $H_h$  les hamiltoniens des électrons et trous lorsqu'un champ magnétique  $B$  est appliqué,  $V_{e-h}$  est l'interaction coulombienne électron-trou,  $H_{ph}$  est l'hamiltonien des phonons-LO libres, et  $H_F$  est l'hamiltonien de Fröhlich.

## Chapitre 2. Polarons électroniques et excitoniques

Afin de pouvoir traiter ce problème, on souhaite décomposer cet hamiltonien en deux parties : la première pouvant être traitée exactement, la deuxième étant traitée en perturbation. La partie non-perturbée sera prise telle que électrons, trous, et phonons-LO soient découplés. De plus, afin de traiter aisément l'interaction avec le champ magnétique appliqué selon  $z$ , on choisira une base d'états électroniques à symétrie cylindrique. La légère anisotropie dans le plan des boîtes sera prise comme une perturbation. On utilise donc la décomposition suivante :

$$H = H_0(B) + V \quad (2.37)$$

Le premier terme correspond à l'hamiltonien non-perturbé et s'écrit :

$$H_0(B) = H_e^{\text{cyl}}(B) + H_h^{\text{cyl}}(B) + V_{e-h}^{\text{diag}} + H_{ph}, \quad (2.38)$$

$H_e^{\text{cyl}}$  et  $H_h^{\text{cyl}}(B)$  étant les hamiltoniens des électrons et trous pour une boîte à symétrie cylindrique en présence du champ magnétique.  $V_{e-h}^{\text{diag}}$  est la partie diagonale de l'interaction coulombienne. Pour cet hamiltonien, électrons, trous et phonons sont découplés. De plus, cet hamiltonien possède une symétrie cylindrique d'axe  $z$ . On utilise donc la base des états définis par leur projection du moment angulaire : les états  $s$  ( $l_z = 0$ ) et  $p^\pm$  ( $l_z = \pm 1$ ). Le champ magnétique introduit un effet Zeeman proportionnel à  $l_z$  plus un terme quadratique. On pourra donc utiliser une base de la forme  $|n_e, n_h, N\rangle$ , où  $n_e$  et  $n_h$  repèrent les différents niveaux d'électrons et de trous, et  $N$  l'état de phonon-LO.

La partie de l'hamiltonien qui sera prise en perturbation est :

$$V = V_a^e + V_a^h + V_{e-h}^{\text{h-d}} + H_F \quad (2.39)$$

où les deux premiers termes sont ceux d'anisotropie de l'électron et du trou.  $V_{e-h}^{\text{h-d}}$  est la partie hors-diagonale de l'interaction coulombienne (entre paires électrons-trous différentes).

**Couplage avec le champ magnétique vertical** Le champ magnétique est appliqué selon l'axe  $z$  ( $\mathbf{B} = B\mathbf{u}_z$ ). Dans la jauge de Coulomb, le potentiel vecteur peut s'écrire :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2}\mathbf{B} \times \mathbf{r} \quad (2.40)$$

L'hamiltonien d'un électron s'écrit alors :

$$\begin{aligned} H &= \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2}{2m^*} + V(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m^*} + V(\mathbf{r}) - \frac{e\mathbf{B} \cdot (\mathbf{r} \times \mathbf{p})}{2m^*} + \frac{e^2(\mathbf{B} \times \mathbf{r})^2}{8m^*} \\ &= H_0 - \frac{eBL_z}{2m^*} + \frac{e^2\rho^2}{8m^*} \end{aligned} \quad (2.41)$$

On retrouve l'hamiltonien sans champ magnétique  $H_0$ , auquel s'ajoute une première correction correspondant à l'effet Zeeman orbital, puis le terme diamagnétique à

## 2.3. Les polarons excitoniques

l'ordre 2 en  $B$ . Le terme Zeeman orbital est proportionnel à  $L_z$ , la projection du moment cinétique selon  $z$ . Les états  $s$ ,  $p_-$  et  $p_+$  sont états propres de  $L_z$  avec les valeurs  $l_z = 0$ ,  $l_z = -1$  et  $l_z = 1$  respectivement. Pour les trous, il faut changer le signe devant  $e$ , ce qui donne un signe opposé pour l'effet Zeeman orbital. En fonction des paramètres variationnels, les effets Zeeman et diamagnétique sont les suivants pour les états  $s$  et  $p$  :

$$E_{s_{e/h}}(B) = E_{s_{e/h}}(0) + \frac{e^2 \beta_s^2 B^2}{8m_{e/h}^*} \quad (2.42a)$$

$$E_{p_e^\pm}(B) = E_s(0) \pm \frac{\hbar e B}{2m_e^*} + \frac{e^2 \beta_{p_e}^2 B^2}{4m_e^*} \quad (2.42b)$$

$$E_{p_h^\pm}(B) = E_s(0) \mp \frac{\hbar e B}{2m_h^*} + \frac{e^2 \beta_{p_h}^2 B^2}{4m_h^*} \quad (2.42c)$$

Le signe de l'effet Zeeman est opposé pour les électrons et trous qui ont même moment cinétique. Pour les niveaux optiquement actifs ( $|p_e^- p_h^+\rangle$  et  $|p_e^+ p_h^-\rangle$ ), les moments cinétiques des électrons et des trous sont opposés, les effets Zeeman s'additionnent en valeurs absolues.

**Anisotropie** L'anisotropie, traitée comme une perturbation (indépendamment de son origine physique discutée dans le chapitre 1), introduit un couplage entre  $p^+$  and  $p^-$  égale à la moitié du splitting observé en spectroscopie intrabande :  $\sim 5$  meV pour les électrons et  $\sim 2$  meV pour les trous. On prendra donc des couplages correspondants  $V_a^e = \langle p_e^- | V_a | p_e^+ \rangle = 2.5 \text{ meV}$  et  $V_a^h = \langle p_h^- | V_a | p_h^+ \rangle = 1 \text{ meV}$ .

### 2.3.3 Couplage exciton-phonon-LO

En revenant à l'origine du couplage de Fröhlich (1.5.2), cet effet électrique se généralise à une paire électron-trou, qui possèdent respectivement des charges  $-e$  et  $+e$  :

$$V_F = \sum_{\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h} \sum_{\mathbf{q}} \frac{iC_F}{q} (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_e} - e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_h}) (a_{\mathbf{q}} - a_{-\mathbf{q}}^+), \quad (2.43)$$

où  $\mathbf{r}_e$  et  $\mathbf{r}_h$  sont les opérateurs positions de l'électron et du trou.

Les états propres du système non-perturbé (sans interaction coulombienne, sans couplage électron-phonon et sans anisotropie) sont de la forme  $|n_e, n_h, N_{\mathbf{q}}\rangle$ , avec  $|n\rangle = |s\rangle, |p^\pm\rangle$  des états purement électroniques.  $|N_{\mathbf{q}}\rangle$  réfère à l'occupation des états de phonons-LO dans le mode de vecteur d'onde  $\{\mathbf{q}\}$ . L'hamiltonien de Fröhlich couple les états qui diffèrent par un phonon :

$$\langle n_e, n_h, 0 | V_F | n'_e, n'_h, 1_{\mathbf{q}} \rangle = \frac{iC_F}{q} [\delta_{n_h n'_h} v_{n_e n'_e}(\mathbf{q}) - \delta_{n_e n'_e} v_{n_h n'_h}(\mathbf{q})] \quad (2.44)$$



## Chapitre 2. Polarons électroniques et excitoniques

avec  $v_{nn'}(\mathbf{q}) = \langle n | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | n' \rangle$ . Pour que le couplage soit non-nul il faut que les paires électron-trou en jeu aient au moins une partie (électron ou trou) identiques. On peut distinguer deux types de couplages :

- Les couplages diagonaux, c'est-à-dire entre même paire électron-trou. Ceux-ci sont de la forme :

$$\langle n_e, n_h, 0 | V_F | n_e, n_h, 1_{\mathbf{q}} \rangle = V_{n_e n_e}(\mathbf{q}) - V_{n_h n_h}(\mathbf{q}) \quad (2.45)$$

où  $V_{n_e n_e}$  et  $V_{n_h n_h}$  sont les couplages effectifs à une particule (électron ou trou) définis dans l'équation 2.13. Ces deux termes ayant des signes opposés dans 2.45, ces couplages excitoniques sont moins forts que pour une charge seule (électron ou trou). Ce couplage s'annule dans la limite où les fonctions d'ondes de l'électron et du trou sont identiques. Ceci est en accord avec le résultat intuitif d'un couplage de Fröhlich affaibli pour une particule globalement neutre. Ce couplage est traité via le formalisme non-perturbatif de Huangh-Rhys, que nous avons décrit plus haut. Ce traitement est indispensable pour la description du polaron fondamental. Par exemple, dans la référence [41], la luminescence de l'exciton fondamental montre de faibles répliques phonons espacés d'environ 36meV. A partir de ces mesures, les auteurs en déduisent un facteur Huangh-Rhys entre 0.012 et 0.020 pour l'exciton fondamental de leurs boîtes.

- Les couplages non-diagonaux entre excitons ayant seulement une partie commune (électron ou trou), l'autre étant différente. Par exemple, si la fonction d'onde de trou est la même, on a :

$$\langle n'_e, n_h, 0 | V_F | n_e, n_h, 1_{\mathbf{q}} \rangle = V_{n'_e n_e}(\mathbf{q}) \quad (2.46)$$

Ces termes sont identiques à ceux en jeu pour un électron ou un trou seuls. Nous allons voir que ce type de couplage peut donner des effets très marqués dans le spectre des états excitoniques excités, surtout si les états en question sont proches de la résonance.

**Base d'états utilisée** Comme on s'intéresse aux états excitoniques de basse énergie, on introduit une base d'états électrons-trous-phonons-LO où électrons et trous sont dans les états  $s$ ,  $p^-$  ou  $p^+$ , et l'occupation des phonons LO vaut 0, 1 ou 2. Parmi ces états possibles, on ne retient que ceux qui vont être couplés directement ou indirectement aux états optiquement actifs  $|p_e^-, p_h^+, 0\rangle$  et  $|p_e^+, p_h^-, 0\rangle$ . Comme pour les électrons, on introduit des modes de phonons particuliers correspondant à chaque paire d'états en jeu. Les 6 modes de phonons différents introduits ici sont désignés par  $\alpha_i$  ( $i = 1, \dots, 6$ ). Ces modes sont reportés dans le tableau 2.7. Au final, on obtient une base de 21 états discrets : 4 états purement excitoniques  $|p_e^\pm, p_h^\pm, 0\rangle$ , 16 états excitoniques à 1 phonon ( $|s_e, p_h^\pm, 1_{\alpha_{i=1,2}}\rangle, |p_e^\pm, s_h, 1_{\alpha_{i=3,4}}\rangle$  et  $|p_e^\pm, p_h^\pm, 1_{\alpha_{i=5,6}}\rangle$ ) et un état d'exciton fondamental à 2 phonons  $|s_e, s_h, 2_{\alpha_1, \alpha_3}\rangle$ . Ces états sont reportés dans le tableau 2.8. L'énergie de ces états découplés en fonction du champ magnétique est montrée sur la figure 2.9.

### 2.3. Les polarons excitoniques

Indice	Mode de phonon
$\alpha_1$	$s_e p_e^-$
$\alpha_2$	$s_e p_e^+$
$\alpha_3$	$s_h p_h^+$
$\alpha_4$	$s_h p_h^-$
$\alpha_5$	$p_e^- p_e^+$
$\alpha_6$	$p_h^- p_h^+$

FIG. 2.7: Modes de phonons

	Electron	Trou	Phonon-LO	$l_z^{\text{tot}}$
1	$p_e^-$	$p_h^+$	0	0
2	$p_e^+$	$p_h^-$	0	0
3	$p_e^-$	$p_h^-$	0	-2
4	$p_e^+$	$p_h^+$	0	+2
5	$s_e$	$p_h^-$	$1_{\alpha_1}$	-2
6	$s_e$	$p_h^+$	$1_{\alpha_1}$	0
7	$s_e$	$p_h^-$	$1_{\alpha_2}$	0
8	$s_e$	$p_h^+$	$1_{\alpha_2}$	+2
9	$p_e^-$	$s_h$	$1_{\alpha_3}$	0
10	$p_e^+$	$s_h$	$1_{\alpha_3}$	+2
11	$p_e^-$	$s_h$	$1_{\alpha_4}$	-2
12	$p_e^+$	$s_h$	$1_{\alpha_4}$	0
13	$p_e^-$	$p_h^-$	$1_{\alpha_5}$	0
14	$p_e^-$	$p_h^+$	$1_{\alpha_5}$	+2
15	$p_e^+$	$p_h^-$	$1_{\alpha_5}$	+2
16	$p_e^+$	$p_h^+$	$1_{\alpha_5}$	+4
17	$p_e^-$	$p_h^-$	$1_{\alpha_6}$	-4
18	$p_e^-$	$p_h^+$	$1_{\alpha_6}$	-2
19	$p_e^+$	$p_h^-$	$1_{\alpha_6}$	-2
20	$p_e^+$	$p_h^+$	$1_{\alpha_6}$	0
21	$s_e$	$s_h$	$1_{\alpha_1} 1_{\alpha_3}$	0

FIG. 2.8: Base d'états découplés électron-trou-phonon. Leur moment cinétique total  $L_z$  est indiqué dans la dernière colonne.

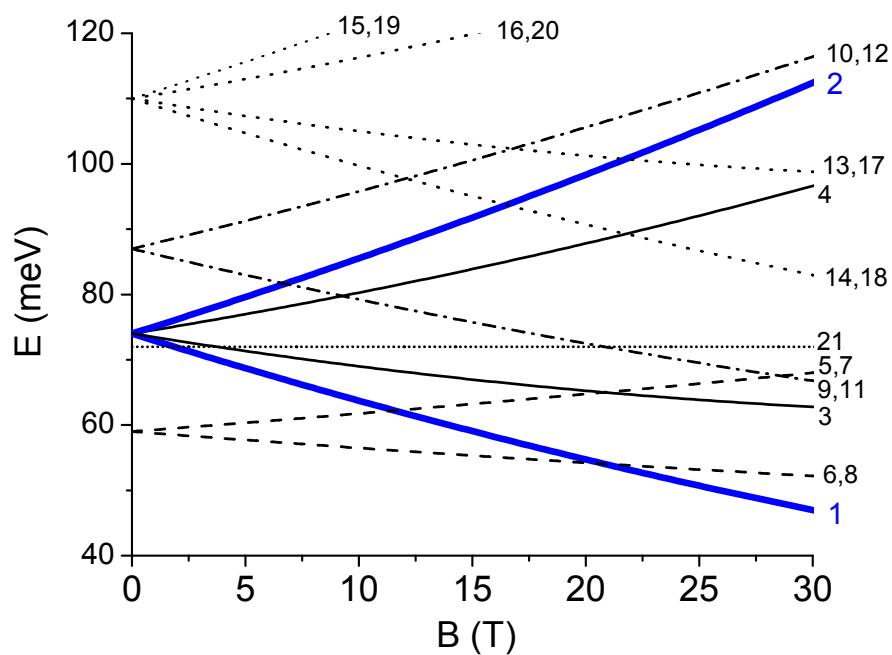


FIG. 2.9: Diagramme d'énergie des états découplés.

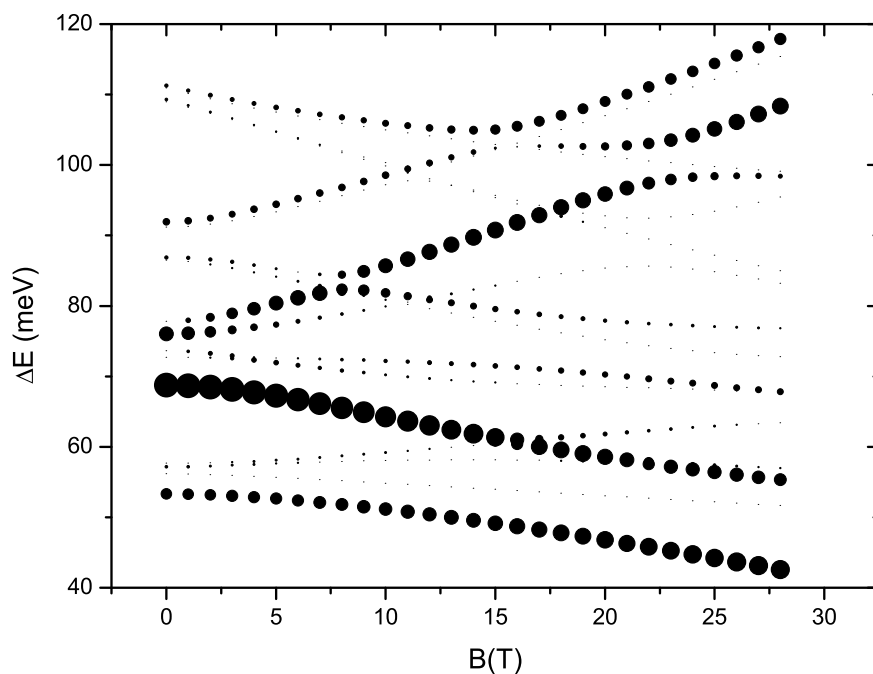


FIG. 2.10: Energies des niveaux de polarons excitoniques en fonction du champ magnétique. Les aires des disques sont proportionnelles aux forces d'oscillateur.

### 2.3. Les polarons excitoniques

Comme l'a montré O. Verzelen dans sa thèse [15], on peut définir un moment cinétique pour les modes de phonons-LO qui couplent des états électroniques à moment cinétique défini. La valeur propre de ce moment cinétique est égale à la différence de moments cinétiques des états couplés. Ainsi le moment cinétique total (électron, trou, phonons-LO) est conservé par le couplage de Fröhlich. L'interaction coulombienne et le couplage de Fröhlich conservent le moment cinétique total  $l_z^{\text{tot}}$  (la somme des moments cinétiques selon  $z$  de l'électron, du trou et de l'état de phonon-LO)  $l_z^{\text{tot}} = l_z^e + l_z^h + l_z^{ph}$ . La valeur de  $l_z^{\text{tot}}$  est indiquée dans la dernière colonne du tableau 2.8. Cette étude sur le moment cinétique permet de repérer rapidement les couplages de Fröhlich et coulombiens qui vont être nuls. Seuls les couplages d'anisotropie ont lieu entre des états à valeurs propres de moments cinétiques différents.

Afin d'illustrer le calcul réalisé dans la base des 21 états, on exprime ci-dessous la restriction de l'hamiltonien  $H$  dans la base constituée par les 8 premiers états définis dans le tableau 2.8. Ces états sont ceux de type  $|p_e, p_h, 0\rangle$  (états 1 à 4) et  $|p_e, s_h, 1\rangle$  (états 5 à 8). Cela correspond aux états de plus basses énergies. La restriction de  $H$  à ce sous-espace s'écrit :

$$\begin{pmatrix} E_{p_e^-, p_h^+, 0} & V_c & V_a^h & V_a^e & 0 & V_1^f & 0 & 0 \\ V_c & E_{p_e^-, p_h^+, 0} & V_a^e & V_a^h & 0 & 0 & V_1^f & 0 \\ V_a^h & V_a^e & E_{p_e^-, p_h^+, 0} & 0 & V_1^f & 0 & 0 & 0 \\ V_a^e & V_a^h & 0 & E_{p_e^-, p_h^+, 0} & 0 & 0 & 0 & V_1^f \\ 0 & 0 & V_1^f & 0 & E_{p_e^-, p_h^+, 1} & V_a^h & 0 & 0 \\ V_1^f & 0 & 0 & 0 & V_a^h & E_{p_e^-, p_h^+, 1} & 0 & 0 \\ 0 & V_1^f & 0 & 0 & 0 & 0 & E_{p_e^-, p_h^+, 1} & V_a^h \\ 0 & 0 & 0 & V_1^f & 0 & 0 & V_a^h & E_{p_e^-, p_h^+, 1} \end{pmatrix} \quad (2.47)$$

où les termes diagonaux s'expriment comme la somme des énergies d'électron, de trou, et de phonon-LO  $E_{ij,n} = E_i(B) + E_j(B) + \langle i, j | V_{e-h} | i, j \rangle + n\hbar\omega_{\text{LO}}$ .  $V_c = \langle 1 | V_{e-h} | 2 \rangle$  représente ici le couplage coulombien entre les deux niveaux optiquement actifs 1 et 2 (de moments cinétiques nuls).  $V_1^f = V_{s_e p_e^-}^f$  est l'interaction de Fröhlich entre les états électrons  $\times$  phonons  $|p_e^-, 1_{\alpha_1}\rangle$  et  $|s_e, 1_{\alpha_1}\rangle$ . Le traitement de l'interaction dans cette base permet de décrire l'anticroisement observé expérimentalement qui a lieu entre les niveaux 1 =  $|p_e^-, p_h^+, 0\rangle$  et 6 =  $|s_e, p_h^+, 1_{\alpha_1}\rangle$ . Cependant, les autres niveaux jouent un rôle non-négligeable, notamment à faible champ magnétique.

La matrice  $21 \times 21$  obtenue est diagonalisée numériquement. Le calcul du spectre des polarons est présenté sur la figure 2.10.

**Paramètres utilisés** Les paramètres des boîtes sont choisis afin d'obtenir à la fois les énergies de transitions intrabandes et interbandes mesurées : l'énergie de transition  $s$ - $p$  est de 47 meV pour les électrons et de 22 meV pour les trous. L'énergie

## Chapitre 2. Polarons électroniques et excitoniques

de détection est fixée à 1215 meV dans l'expérience de PLE. Les paramètres issus de cet ajustement sont les suivants : cône tronqué de rayon  $R = 115\text{\AA}$ , hauteur  $h = 28\text{\AA}$ , avec un angle à la base  $\alpha = 30^\circ$  et des décalages de bandes de 290 meV (bande de conduction) et 212 meV (bande de valence). La constante de Fröhlich est prise à  $\alpha_F = 0.11$  <sup>2</sup>

### 2.3.4 Force d'oscillateur

La force d'oscillateur de la transition interbande de l'état vide  $|\emptyset\rangle$  vers l'état de polaron excitonique  $|\psi\rangle$  est donnée par :

$$OS_{|\psi\rangle} = \frac{2}{m_0\hbar\omega} |\langle\emptyset|\boldsymbol{\varepsilon}\cdot\mathbf{p}|\psi\rangle|^2 \quad (2.48)$$

L'état de polaron excitonique peut se décomposer sur la base découplée utilisée ici :

$$|\psi\rangle = \sum_i \alpha_i |\varphi_i\rangle \quad (2.49)$$

avec  $|\varphi_i\rangle = |c_{m_j^e}, \varphi_i^e\rangle \otimes |v_{m_j^h}, \varphi_i^h\rangle \otimes |N_i\rangle$ , où  $c_{m_j^e}$  et  $v_{m_j^h}$  sont les parties atomiques des fonctions d'ondes correspondants aux spin  $m_j^{e/h}$ . Les niveaux de spin (électrons, trous lourds) optiquement actifs sont  $(m_j^e = +1/2, m_j^h = -3/2)$  et  $(m_j^e = -1/2, m_j^h = +3/2)$ , chacun correspondant à des polarisations circulaires  $\sigma_-$  et  $\sigma_+$ .

$$\langle\emptyset|\boldsymbol{\varepsilon}\cdot\mathbf{p}|\psi\rangle = \sum_i \alpha_i \langle\varphi_i^e|\varphi_i^h\rangle \langle c|\boldsymbol{\varepsilon}\cdot\mathbf{p}|v\rangle \delta_{0,N_i} \quad (2.50)$$

Seuls les niveaux à 0 phonons-LO seront optiquement actifs. En coordonnées cylindriques, les fonctions des états  $p$  considérées sont de la forme  $p_e^\pm(\rho, z, \theta) = p_{e/h}(\rho, z) e^{\pm i\theta}$  et  $p_h^\pm(\rho, z, \theta) = p_{e/h}(\rho, z) e^{\mp i\theta}$ . On a donc :

$$\langle p_e^+ | p_h^- \rangle = \langle p_e^- | p_h^+ \rangle = 2\pi \int d\rho \int dz p_e(\rho, z) p_h(\rho, z) \quad (2.51)$$

alors que  $\langle p_e^+ | p_h^+ \rangle$  et  $\langle p_e^- | p_h^- \rangle$  sont nuls. Ainsi, dans la gamme d'énergie étudiée, les seuls niveaux optiquement actifs sont  $|p_e^-, p_h^+, 0\rangle$  et  $|p_e^+, p_h^-, 0\rangle$ .

$$OS_{|\psi\rangle} = \frac{2|\langle c|\boldsymbol{\varepsilon}\cdot\mathbf{p}|v\rangle|^2}{m_0\hbar\omega} |\alpha_1 + \alpha_2|^2 |\langle p_e^+ | p_h^- \rangle|^2 \quad (2.52)$$

Comme on s'intéresse aux variations relatives de forces d'oscillateur, on calcule  $|\alpha_1 + \alpha_2|^2$  (la variation relative de l'énergie du photon interbande  $\hbar\omega$  est négligeable).

$$OS_{|\psi\rangle} \propto |\langle p_e^-, p_h^+, 0 | \psi \rangle + \langle p_e^+, p_h^-, 0 | \psi \rangle|^2 \quad (2.53)$$

<sup>2</sup>Cette valeur peut paraître anormalement élevée comparée à celle de GaAs (0.06), mais il faut garder à l'esprit que c'est la racine de  $\alpha_F$  qui intervient dans  $C_f$  (voir équations 1.20 et 1.21).

### 2.3.5 Comparaison théorie-expérience

En utilisant l'équation 2.53, on a calculé les absorptions interbandes. Les spectres d'absorption calculés sont présentés sur la figure 2.11(a) pour différents champs magnétiques. Dans le calcul, chaque niveau discret est remplacé par une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur 12 meV dans le but de prendre en compte l'élargissement inhomogène, c'est à dire les fluctuations des paramètres de boîte à l'intérieur du sous-ensemble défini par l'énergie de détection.

Remarquons tout d'abord qu'un spectre de PLE n'est pas forcément équivalent à un spectre d'absorption. Cependant, comme nous le verrons dans le chapitre 3, les temps de relaxation intrabandes sont généralement bien inférieurs aux temps de recombinaison radiatifs, de l'ordre de la nanoseconde. Dans cette hypothèse, toute absorption d'un photon par un état excité est suivie d'une relaxation vers le niveau fondamental. Le signal de PLE est alors proportionnel à l'absorption.

Les calculs de l'absorption sont comparés aux spectres expérimentaux de PLE sur la figure 2.11(b). L'évolution des forces d'oscillateur est assez bien décrite par notre modèle. En particulier on observe un échange de forces d'oscillateur entre les deux pics de basse énergie. Ces deux pics proviennent essentiellement des états  $|1\rangle$  et  $|6\rangle$  de la base découplée (voir tableau 2.8 et figure 2.9) : l'état  $|1\rangle = |p_e^-, p_h^+, 0\rangle$ , optiquement actif, vient anticroiser l'état  $|6\rangle = |s_e, p_h^+, 1_{\alpha_1}\rangle$ , dont l'effet Zeeman orbital est beaucoup plus faible.

Les positions des maxima, comparés sur la figure 2.11(b), sont en bon accord pour les trois pics de basse énergie. A plus haute énergie, le pic à 110 meV n'est pas décrit par notre modèle. Il n'est pas assez énergétique pour provenir de la transition  $2s_e 2s_h$  (calculé aux alentours de 160 meV). Il pourrait s'agir de l'état fondamental de trou léger, qui n'est pas pris en compte dans le calcul. En effet, une séparation en énergie du même ordre de grandeur (100 meV) est prévue par G. Narvaez et A. Zunger dans la référence [42] entre l'état fondamental et un état excitonique, également de symétrie  $s$ , mais faisant intervenir un trou léger.

## Conclusion

En résumé, nous avons modélisé des expériences de PLE sous champ magnétique. Les différentes paires électron-trous ont des évolutions en champ magnétique caractéristique de leur moment cinétique totale. L'interaction de Fröhlich, qui couple des paires électrons-trous à nombre de phonons-LO différent, s'avère nécessaire pour rendre compte des spectres expérimentaux. En particulier, on observe un anticroisement en champ magnétique que l'on associe au couplage fort entre excitons et phonons-LO. Nous avons donc mis en évidence l'existence de polarons excitoniques dans les boîtes quantiques. Ceci aura certainement des conséquences sur le temps de vie et le temps de cohérence de ces états.

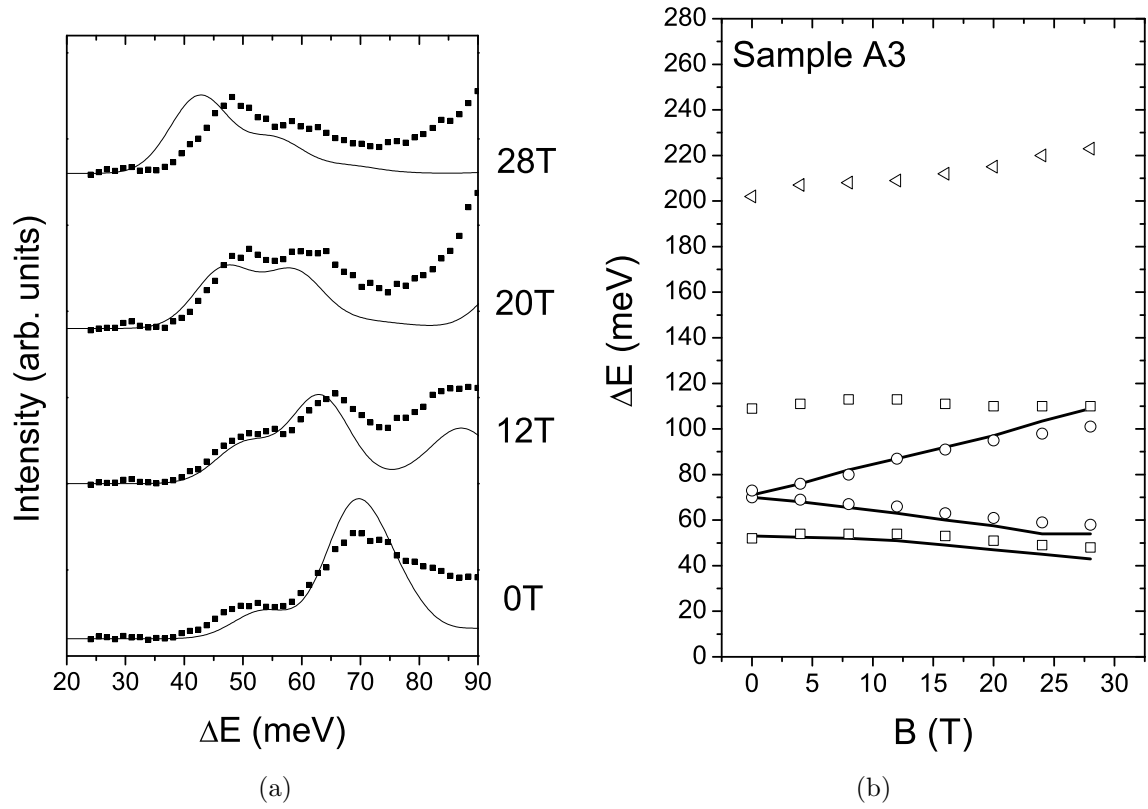


FIG. 2.11: Comparaison théorie expérience. (a) Spectres expérimentaux (symboles) et calculés (lignes pleines) pour différents champs magnétiques. (b) Position des maxima pour le spectre de PLE (symboles) et pour le calcul de l'absorption (lignes pleines).

# Chapitre 3

## Relaxation des polarons

Dans ce chapitre, on s'intéresse aux temps de relaxation entre les niveaux électroniques discrets, qui, d'après le chapitre précédent, doivent être traités en tant que polarons. Connaître ce temps de relaxation est primordial en vue des différentes applications potentielles de ces objets comme sources ou détecteurs dans l'infrarouge lointain.

Étant donné que l'énergie de séparation entre le niveau fondamental et les premiers états excités est de l'ordre de quelques dizaines de meV, les premières études théoriques [43, 44, 35] ont prédit que la relaxation d'énergie était affectée par le phénomène de « phonon bottleneck » : les processus d'émission de phonons acoustiques sont fortement inhibés, voire interdits, du fait des fortes énergies en jeu. De plus, toujours d'après ces premières études, la relaxation par émission de phonons optiques longitudinaux (LO) ne peut avoir lieu à moins que l'écart en énergie entre deux niveaux électroniques discrets soit égal à l'énergie des phonons optiques.

Les études subséquentes (théoriques et expérimentales) démontrant l'existence d'un couplage fort entre électrons confinés et phonons-LO n'ont pas modifié ce schéma. En effet, à cause du régime de couplage fort, l'émission de phonons-LO est toujours impossible, et ce même si l'énergie électronique est résonnante avec l'énergie des phonons LO (cf chapitre 2) : les états mixtes issus de ce couplage fort (les polarons) sont des états stationnaires de la boîte quantique.

Cependant, un temps fini de relaxation est mesuré [11, 12] par des expériences pompe-sonde. La nature de cette relaxation a été expliquée en premier lieu par Li *et al* [14] en prenant en compte l'instabilité intrinsèque des phonons LO. D'autres modèles [45, 46] ont été proposés par la suite, mais n'autorisent la relaxation des polarons que dans une fenêtre d'énergie étroite autour de celle des phonons LO.

Dans ce chapitre, nous reviendrons d'abord sur les modèles de relaxation des polarons existants (3.1). En particulier, nous verrons (3.2) les limites du modèle semi-classique de Li *et al.* [14], qui semble pouvoir décrire de manière acceptable les résultats expérimentaux dans les références [11] et [12]. Puis nous étudierons de manière générale le problème des états polarons couplés à un réservoir multi-phonon par l'anharmonicité du cristal (3.3). Nous montrerons alors que le taux de relaxation



du polaron est égal au produit du poids de sa composante phonon-LO par le taux de relaxation d'un phonon-LO *qui aurait l'énergie du polaron*. Puis, à l'aide d'un modèle réaliste de couplage anharmonique entre phonons, on calculera l'efficacité des différents processus anharmoniques, et on déduira le temps de vie des polarons en fonction de leur énergie (3.4), sans se limiter aux seuls processus impliqués dans la désintégration des phonons LO dans le massif. Nous comparerons nos calculs aux résultats expérimentaux, notamment dans la gamme d'énergie térahertz (3.5). Enfin (3.6), nous modéliserons les expériences pompe-sonde.

### 3.1 Les modèles antérieurs et leurs limites

Jusque là, deux modèles étaient disponibles dans la littérature pour décrire la relaxation des polarons :

- Li *et al* [14] furent les premiers à considérer la relaxation des porteurs induite par l'instabilité des phonons-LO. Dans leur modèle, un taux d'amortissement des phonons était incorporé de manière phénoménologique à l'équation de Schrödinger dépendante du temps pour le système électron-phonon-LO. De là, ils dérivèrent une formule pour le temps de vie des polarons, dépendante de deux paramètres : la force du couplage électron-phonon-LO et le taux d'amortissement. Par la suite, ce modèle a été utilisé [11, 12] en prenant ces paramètres comme ajustables pour rendre compte des mesures de l'augmentation du temps de vie  $\tau_{pol}$  des polarons avec leur énergie  $E_{pol}$  dans la gamme de 40 à 52 meV. Cependant, ce modèle n'explique pas la décroissance de  $\tau_{pol}$  pour les polarons plus énergétiques [12].
- Verzele *et al* [45] puis Jacak *et al* [46] ont appliqué la règle d'or de Fermi aux états polarons, en supposant que le mécanisme anharmonique mis en évidence par Vallée et Bogani pour les phonons-LO massifs ( $LO \rightarrow LO + TA$ ) [47] était le seul possible. Cette hypothèse mène à l'existence d'une fenêtre énergétique étroite de relaxation : seuls les polarons dont l'énergie  $E_{pol}$  est comprise entre environ 35 et 44 meV peuvent se désintégrer. Ce modèle ne permettait donc pas d'interpréter les expériences où une gamme d'énergie bien plus large a pu être sondée.

Dans la section suivante, nous revenons sur le premier modèle (semi-classique). Nous verrons que le résultat de la référence [14] est erroné, et que son expression corrigée ne peut rendre compte des résultats expérimentaux avec des paramètres acceptables.

### 3.2 Le modèle semi-classique

On s'intéresse ici à la relaxation des états électroniques  $p$  vers l'état fondamental  $s$ . Comme nous l'avons vu dans la chapitre 2, il faut considérer les deux états polarons

### 3.2. Le modèle semi-classique

correspondants ( $i=1,2$ ) :

$$|\psi_i\rangle = \alpha_i|p,0\rangle + \beta_i|s,1_{sp}\rangle \quad (3.1)$$

où  $p$  réfère aux états  $p_x$  ou  $p_y$ . L'origine des énergies est prise au niveau de  $|s,0\rangle$ , et on néglige l'effet des couplages de Fröhlich anti-résonnants sur ce niveau.

Le principe du modèle semi-classique est d'introduire un amortissement pour les phonons-LO qui correspond à celui du massif. On introduit une partie imaginaire dans les équations couplées d'évolution ou bien dans l'hamiltonien du système à deux niveaux ( $|s,1_{sp}\rangle, |p,0\rangle$ ) :

$$H(\varepsilon) = \begin{pmatrix} E_{LO} - i\Gamma_{LO}/2 & V_{sp} \\ V_{sp} & E_{sp} \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

Comme nous le montrerons en 3.3.2, le taux<sup>1</sup> de relaxation des états polarons est alors donné par :

$$\Gamma_i(E_i) = |\beta_i|^2 \Gamma_{LO} = \frac{V_{sp}^2}{(E_i - E_{LO})^2 + V_{sp}^2} \Gamma_{LO} \quad (3.3)$$

où  $\Gamma_{LO} = \hbar/\tau_{LO}$  est le taux de relaxation des phonons LO dans le massif. Cette formule correspond à l'idée intuitive que le taux de relaxation du polaron est donné par le produit du poids de sa composante phonon-LO par le taux de relaxation des phonons-LO dans le massif. On remarque que cette formule est définie pour toute énergie, et ne dépend pas de l'indice  $i$  : ceci vient du fait qu'à toute énergie  $E$  donnée correspond un état polaron d'énergie  $E_i = E$ . Cet état polaron est à dominante électronique ( $i = 1$ ) si  $E < E_{LO} - V_{sp}$  ou  $E > E_{LO} + V_{sp}$ , ou à dominante phonon-LO ( $i = 2$ ) si  $E_{LO} - V_{sp} < E < E_{LO} + V_{sp}$ . A la résonance phonon  $E_{sp} = E_{LO}$ , les états polarons d'énergies  $E_{1/2} = E_{LO} \pm V_{sp}$  ont un temps de vie  $\tau_{pol} = \tau_{LO}/2$  (le cas de figure  $E_2 = E_{LO}$  correspond au cas limite de la branche purement phononique lorsque l'énergie électronique  $E_{sp}$  diverge). A l'inverse, pour les polarons éloignés de la résonance phonon-LO (et donc à majorité électronique), on obtient :

$$\tau_{pol} \sim \frac{\hbar(E_i - E_{LO})^2}{V_{sp}^2 \Gamma_{LO}} \quad (3.4)$$

Sur la figure 3.1, nous avons tracé des courbes du temps de vie  $\tau_{pol} = \hbar/\Gamma(E)$  données par ce modèle semi-classique pour différents paramètres :  $\tau_{LO}$  est pris égal à 15ps, alors que  $V_{sp}$  est de 4, 6 et 8 meV. Le meilleur ajustement est obtenu avec  $V_{sp(fit)} \simeq 8$  meV. Cependant, dans nos calculs, pour des paramètres de boîtes moyens (par exemple ceux utilisés dans la chapitre 1), on trouve  $V_{sp}$  aux alentours de 4meV.

<sup>1</sup>Par abus de langage, nous désignerons par taux de relaxation  $\hbar/\tau$  où  $\tau$  est le temps de relaxation. Il faudra donc diviser par  $\hbar$  les expressions données ici pour obtenir le taux de relaxation au sens usuel.

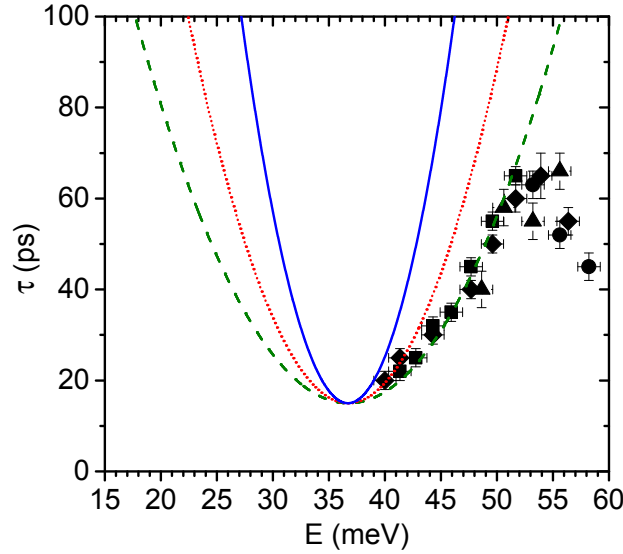


FIG. 3.1: Temps de relaxation des polarons en fonction de leur énergie donné par la méthode semi-classique pour  $\tau_{LO} = 15\text{ps}$  et  $V_{sp} = 4\text{meV}$  (ligne pleine),  $V_{sp} = 6\text{meV}$  (ligne pointillée),  $V_{sp} = 8\text{meV}$  (ligne tiretée). Les symboles sont les données expérimentales de la référence [12].

Même en jouant avec les paramètres des boîtes et avec des valeurs acceptables pour la constante de Fröhlich,  $V_{sp}$  ne dépasse pas les 6 meV.

Dans les premières expériences du temps de relaxation des polarons [11, 12], la formule de Li *et al* [14] a été utilisée pour ajuster les temps mesurés. Avec des paramètres assez raisonnables ( $\tau_{LO} = 13\text{ps}$  et  $V_{sp} = 6\text{meV}$  dans [12]), le modèle s'accorde assez bien aux résultats sur une plage d'énergie assez large. Cependant, nous nous sommes aperçu qu'il y avait une erreur dans leur calcul. L'amortissement  $\Gamma_k$  est introduit dans la formule (3) de l'article [14], qui représente les équations couplées d'évolution. Par ailleurs ce  $\Gamma = \Gamma_{LO}$  (pris indépendant de  $k$ ) est défini comme le taux de relaxation des phonons LO<sup>2</sup>. Il faut donc remplacer  $\Gamma$  par  $\Gamma/2$  dans leur formule (10). Cette erreur dans le modèle explique pourquoi un bon accord est obtenu dans la référence [12] avec  $V_{sp} = 6\text{meV}$ . En effet, pour les polarons éloignés de la résonance (voir équation 3.4) on s'aperçoit que l'erreur effectuée équivaut à multiplier le couplage de Fröhlich par un facteur  $\sqrt{2}$ .

De plus, le résultat dans [14] est donné en fonction de l'énergie de la transition purement électronique, alors que l'énergie sondée expérimentalement par le photon correspond à celle de l'état polaron. Ceci est une seconde source d'erreur dans la comparaison théorie-expérience, en particulier au voisinage de la résonance où les éner-

<sup>2</sup>En théorie, l'amortissement introduit dans la fonction d'onde doit être moitié de celui de la population : si la fonction d'onde évolue comme  $e^{-\Gamma t/2}$ , la population décroît en  $e^{-\Gamma t}$ .

### 3.3. États polarons couplés à un réservoir multi-phonons

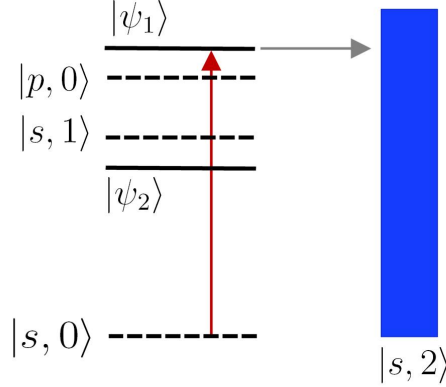


FIG. 3.2: Schéma montrant les niveaux polarons et le réservoir à plusieurs phonons (bleu) dans lequel ils peuvent se désintégrer par couplage anharmonique (flèche grise). La flèche rouge représente l'excitation du polaron par un photon de l'infra-rouge lointain. L'états polaron à dominante électronique est noté  $\psi_1$ , celui à dominante phonon ( $\psi_2$ ). L'indice 2 dans  $|s, 2\rangle$  représente un état générique du réservoir à 2 phonons.

gies des transitions polaron et électronique diffèrent de façon notable. Par exemple, la mesure effectuée à une énergie d'excitation à 40 meV sur la figure 3.1 correspond, pour  $V_{sp} = 4meV$ , à l'état polaron issu d'un couplage résonnant ( $E_{sp} = E_{LO}$ ).

### 3.3 États polarons couplés à un réservoir multi-phonons

Nous présentons ici deux façons de traiter l'interaction entre le système à 2 niveaux constitué par les deux niveaux de polarons et le continuum du réservoir à plusieurs phonons auquel les phonons-LO sont couplés par le terme d'anharmonicité. Ces deux méthodes sont équivalentes, mais il semble intéressant de les présenter dans les deux cas : la première, basée sur l'application de la règle d'or de Fermi est la plus simple. La deuxième, basée sur la méthode de projecteurs avec l'opérateur résolvante, plus rigoureuse, a l'avantage de montrer la différence avec les approximations menant à un traitement de type semi-classique.

On notera  $V_a$  le terme anharmonique des vibrations du réseau. Ce couplage sera traité de manière générale dans cette section, et sera discuté en détail dans la section suivante (3.4). On remarquera qu'il agit seulement sur les parties phonons, permettant en particulier de détruire un phonon LO et de créer plusieurs autres phonons (deux au minimum).

### 3.3.1 Règle d'or de Fermi

On considère les états polarons  $\psi_i$  décrits précédemment. Le couplage anharmonique  $V_a$  couple les phonons-LO à un réservoir à plusieurs phonons dont les états seront désignés par  $\nu$  en toute généralité. On négligera (dans un premier temps) l'effet polaron pour l'état fondamental. Les polarons seront donc couplés au continuum constitué par l'état  $s$  à plusieurs phonons  $|s, \nu\rangle$ . En appliquant la règle d'or de Fermi aux états polarons, le taux de relaxation de ces états s'écrit :

$$\begin{aligned}\Gamma_i(E_i) &= 2\pi \sum_{\nu} |\langle s, \nu | V_a | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_i - E_{\nu}) \\ &= 2\pi \sum_{\nu} |\beta_i|^2 |\langle \nu | V_a | 1_{sp} \rangle|^2 \delta(E_i - E_{\nu})\end{aligned}\quad (3.5)$$

Étant donné que le couplage anharmonique agit uniquement sur la partie phonon, le taux de relaxation est proportionnel à  $|\beta_i|^2$ . On peut décomposer cette expression en deux parties :

$$\Gamma_i(E_i) = |\beta_i|^2 \Gamma^{\text{ph}}(E_i) \quad (3.6a)$$

$$\Gamma^{\text{ph}}(E_i) = 2\pi \sum_{\nu} |\langle \nu | V_a | 1_{sp} \rangle|^2 \delta(E_i - E_{\nu}) \quad (3.6b)$$

### 3.3.2 Hamiltonien non-hermitique

Une autre approche consiste à introduire une partie imaginaire dans l'hamiltonien du système électron-phonon-LO. L'ajout de cette partie imaginaire se justifie de façon rigoureuse lorsque l'on emploie le formalisme des opérateurs de projection pour l'opérateur résolvante [37].

On utilise ici la technique d'opérateurs de projection sur le sous-espace que l'on souhaite étudier, c'est-à-dire le système à deux niveaux constitués par les polarons :  $P$  est le projecteur sur le sous-espace  $(|s, 1_{sp}\rangle, |p, 0\rangle)$ , alors que  $Q = 1 - P$ . La projection de l'opérateur résolvante s'exprime alors :

$$PG(z)P = \frac{1}{z - PH_0P - PR(z)P} \quad (3.7)$$

$$R(z) = V_a + V_a \frac{Q}{z - QH_0Q - QV_aQ} V_a \quad (3.8)$$

On peut exprimer la restriction de l'opérateur  $R$  dans la base  $(|s, 1_{sp}\rangle, |p, 0\rangle)$  :

$$PR(\varepsilon + i0^+)P = \begin{pmatrix} \Delta^{\text{ph}}(\varepsilon) - i\Gamma^{\text{ph}}(\varepsilon)/2 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

### 3.3. États polarons couplés à un réservoir multi-phonons

avec

$$\Gamma^{ph}(\varepsilon) = 2\pi \sum_{\nu} |\langle \nu | V_a | 1_{sp} \rangle|^2 \delta(\varepsilon - E_{\nu}) \quad (3.10)$$

$$\Delta^{ph}(\varepsilon) = \sum_{\nu} \mathcal{P} \frac{|V_{\nu}|^2}{E - \varepsilon_{\nu}} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon' \mathcal{P} \frac{\Gamma(\varepsilon')}{\varepsilon - \varepsilon'} \quad (3.11)$$

On peut exprimer un hamiltonien effectif  $H_{eff}(\varepsilon) = P [H_0 + R(\varepsilon + i0^+)] P$  dans cette base :

$$H_{eff}(\varepsilon) = \begin{pmatrix} E_{LO} + \Delta^{ph}(\varepsilon) - i\Gamma^{ph}(\varepsilon)/2 & V_{sp} \\ V_{sp} & E_{sp} \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Comme nous le vérifierons a posteriori,  $\Delta^{ph}(E)$  peut être négligé. On suppose également  $\Gamma(\varepsilon) \ll V_{sp}$ . Avec ces hypothèses, la diagonalisation de cette matrice s'écrit :

$$H_{eff}(\varepsilon) = M^+ \begin{pmatrix} \varepsilon_1 - i\frac{\Gamma_1(\varepsilon)}{2} & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 - i\frac{\Gamma_2(\varepsilon)}{2} \end{pmatrix} M \quad (3.13)$$

$$\varepsilon_{1/2} = \hbar\omega_{LO} + \frac{\delta}{2} \left( 1 \pm \sqrt{1 + 4\frac{V_{sp}^2}{\delta^2}} \right) \quad (3.14)$$

$$\Gamma_{1/2}^{ph}(\varepsilon) = \frac{\Gamma(E)}{2} \left( 1 \mp \frac{1}{\sqrt{1 + 4\frac{V_{sp}^2}{\delta^2}}} \right) \quad (3.15)$$

où  $\delta$  est défini comme l'écart énergétique entre le niveau électronique  $p$  et la réplique à 1 phonon-LO de  $s$  :  $\delta = E_{sp} - \hbar\omega_{LO}$ .  $M$  est la matrice de passage des états  $|s, 1_{sp}\rangle$  et  $|p, 0\rangle$  aux états polarons  $\psi_1$  et  $\psi_2$  :

$$M = \frac{1}{\sqrt{V_{sp}^2 + \Delta_{1/2}}} \begin{pmatrix} \Delta_{1/2} & V_{sp} \\ -V_{sp} & \Delta_{1/2} \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

où  $\Delta_{1/2}$  est défini par  $\Delta_i = \varepsilon_i - \hbar\omega_{LO}$ .

La transformée de Fourier de l'opérateur évolution s'écrit :

$$\begin{aligned} PU(E)P &= \frac{1}{2i\pi} P [G(E - i0^+) - G(E + i0^+)] P \\ &= M^+ \begin{pmatrix} \frac{1}{\pi} \frac{\frac{\Gamma_1(E)}{2}}{[E - \varepsilon_1]^2 + \left[\frac{\Gamma_1(E)}{2}\right]^2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{\pi} \frac{\frac{\Gamma_2(E)}{2}}{[E - \varepsilon_2]^2 + \left[\frac{\Gamma_1(E)}{2}\right]^2} \end{pmatrix} M \end{aligned} \quad (3.17)$$

### Chapitre 3. Relaxation des polarons

Si l'on fait l'hypothèse que  $\frac{d\Gamma(E)}{dE} \ll 1$  (on vérifiera cette hypothèse plus loin), on peut approximer chacun des termes par une lorentzienne :

$$\frac{\frac{\Gamma_i(E)}{2}}{[E - \varepsilon_i]^2 + \left[\frac{\Gamma_i(E)}{2}\right]^2} \simeq \frac{\frac{\Gamma_i(\varepsilon_i)}{2}}{[E - \varepsilon_i]^2 + \left[\frac{\Gamma_i(\varepsilon_i)}{2}\right]^2} \quad (3.18)$$

L'opérateur évolution  $U(\tau)$  s'écrit alors :

$$PU(\tau)P = M^+ \begin{pmatrix} e^{-i\varepsilon_1\tau/\hbar} e^{-\Gamma_1(\varepsilon_1)|\tau|/2\hbar} & 0 \\ 0 & e^{-i\varepsilon_2\tau/\hbar} e^{-\Gamma_2(\varepsilon_2)|\tau|/2\hbar} \end{pmatrix} M \quad (3.19)$$

Finalement, on exprime  $\delta$  ( $\delta = E_{sp} - \hbar\omega_{LO}$ ) en fonction de la séparation énergétique entre le polaron considéré et le phonon-LO d'énergie  $\Delta_i = \varepsilon_i - \hbar\omega_{LO}$ . La partie réelle du déterminant de l'hamiltonien effectif donne :

$$-\Delta(\delta - \Delta) - V_{sp}^2 = 0 \quad (3.20)$$

$$\delta = \Delta - \frac{V_{sp}^2}{\Delta} \quad (3.21)$$

On remplace  $\delta$  par  $\Delta$  dans les expressions trouvées précédemment (Eq. 3.15) :

$$1 \mp \frac{1}{\sqrt{1 + 4 \frac{\Delta^2 V_{sp}^2}{(\Delta^2 - V_{sp}^2)^2}}} = 1 \mp \frac{|\Delta^2 - V_{sp}^2|}{\Delta^2 + V_{sp}^2} \quad (3.22)$$

Comme  $\Delta_1 > V_{sp}$  et  $\Delta_2 < V_{sp}$  d'après 3.14, on retrouve au final :

$$\Gamma_{1/2}(\varepsilon) = \Gamma^{ph}(E) \frac{V_{sp}^2}{\Delta_{1/2}^2 + V_{sp}^2} = \Gamma(E) |\beta_{1/2}|^2 \quad (3.23)$$

On retrouve donc la même formule que précédemment. Dans cette méthode on fait apparaître un hamiltonien non-hermitique. La méthode semi-classique est un cas limite de cette étude, où  $\Gamma^{ph}(E)$  est remplacé par la constante  $\Gamma_{LO}$ . Cependant, les variations de  $\Gamma^{ph}(E)$  ne sont pas du tout négligeables, comme nous le verrons dans la suite. On a toutefois effectué des approximations, qui seront vérifiées dans la suite. On reste notamment dans le cadre d'une relaxation de type exponentielle, car on a approximé chaque pic par une lorentzienne. De plus, on obtient ici une expression matricielle, qui permet de décrire l'évolution du système à 2 niveaux.

Contrairement au modèle semi-classique, le taux d'amortissement qui rentre en jeu pour rendre compte de l'instabilité de la partie phonon est évalué à l'énergie du polaron, et non à celle des phonons-LO. Comme cette énergie  $E_i$  peut être très différente de  $E_{LO}$ , la force du couplage anharmonique ainsi que la densité d'état des états multi-phonons  $|\nu\rangle$  résonnants avec  $E_i$  peuvent différer beaucoup de la situation dans le massif. Par conséquent, comme nous le verrons ci-dessous,  $\Gamma^{ph}(E_i)$  peut être très différent de  $\Gamma^{ph}(E_{LO})$ .

## 3.4 Conséquences de l'anharmonicité du cristal pour les polarons

Comme dans toute cette thèse, on considère un cristal massif du point de vue des modes de vibrations. Les vibrations des atomes d'un cristal autour de leurs positions d'équilibres, traitées à l'ordre le plus bas, sont décrites par le formalisme des phonons (c'est-à-dire à l'ordre 2 puisque la position d'équilibre de chaque atome correspond à un minimum de potentiel). La prise en compte des termes d'ordre supérieur donne naissance à des termes d'interaction entre les phonons. Ces termes anharmoniques sont responsables d'effets importants dans les matériaux massifs tels que la diffusion de la chaleur.

### 3.4.1 Temps de vie des phonons-LO dans le massif

Différents types de traitement de l'anharmonicité existent dans la littérature afin de calculer l'élargissement  $\Gamma_{\text{LO}}$  des phonons-LO : des calculs de type premiers principes ont été utilisés par Debernardi *et al.* [48, 49], alors que Klemens [50] et plus récemment Barman et Srivastava [51] ont utilisé une approche plutôt phénoménologique où les couplages anharmoniques sont approximés via la constante de Grüneisen.

Expérimentalement, l'élargissement des phonons-LO dans GaAs a été mesuré par Vallée et Bogani [47] par diffusion Raman anti-Stokes cohérente. A basse température (6K), le temps de décohérence des phonons-LO de centre de zone est mesuré à  $T_2/2 = 9.2 \pm 0.6\text{ps}$ . A 77K, ces mesures donnent la même valeur que celle du temps de vie de 7ps mesuré par ailleurs [52], ce qui tend à montrer que  $T_2 = 2T_1$ .

Mais le mécanisme dominant dans le GaAs massif reste une question ouverte. La dépendance en température des mesures de Vallée et Bogani [47] met en évidence le mécanisme  $\text{LO} \rightarrow \text{LO} + \text{TA}$ . Les calculs effectués par Debernardi *et al.* [48, 49] donnent une prédominance au mécanisme  $\text{LO} \rightarrow \text{LA} + \text{TA}$ , alors que l'approche de Barman et Srivastava [51] conduit à un canal dominant  $\text{LO} \rightarrow \text{LA} + \text{LA}$ . Nous tenterons d'expliquer plus loin la sensibilité des calculs aux paramètres utilisés.

### 3.4.2 Terme anharmonique cubique

Nous généralisons l'approche de Barman et Srivastava [53, 51] pour modéliser les couplages anharmoniques dans les matériaux massifs. On considère uniquement la partie cubique de l'hamiltonien vibrationnel, qui constitue le terme de correction d'ordre le plus bas au formalisme des phonons :

$$V_a = \frac{\Omega}{3!\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}_0, j_0, \mathbf{k}_1, j_1, \mathbf{k}_2, j_2} P(\mathbf{k}_0, j_0; \mathbf{k}_1, j_1; \mathbf{k}_2, j_2) u_{\mathbf{k}_0, j_0} u_{\mathbf{k}_1, j_1} u_{\mathbf{k}_2, j_2} \delta(\mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \quad (3.24)$$



### Chapitre 3. Relaxation des polarons

où  $\Omega$  est le volume de la cellule unitaire ( $V = N\Omega$ ) et  $u_{\mathbf{k},j}$  est la transformée de Fourier du déplacement des atomes pour une branche  $j$  :

$$u_{\mathbf{k},j} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\mu\omega_{\mathbf{k},j}}}(a_{\mathbf{k},j} + a_{-\mathbf{k},j}^+) \quad (3.25)$$

Le terme anharmonique  $V_a$  couple les trois différentes branches  $j_0$ ,  $j_1$  et  $j_2$  entre elles. Ainsi un phonon d'une branche  $j_0$  est couplé à plusieurs canaux de désintégration constitués de couple de phonons  $(j_1, j_2)$ . Le facteur  $3!$  prend en compte les processus équivalents obtenus par permutation circulaire des indices dans la sommation triple.

L'équation 3.24 est tout à fait générale pour une interaction anharmonique cubique. La conservation de l'impulsion globale provient du caractère massif du cristal considéré ici. Une approche souvent utilisée est d'exprimer le terme  $P$  de la façon suivante [53] :

$$|P(\mathbf{k}_0, j_0; \mathbf{k}_1, j_1; \mathbf{k}_2, j_2)| = \frac{2\rho\gamma_{j_0, j_1, j_2}}{\bar{c}} \omega_{\mathbf{k}_0, j_0} \omega_{\mathbf{k}_1, j_1} \omega_{\mathbf{k}_2, j_2} \quad (3.26)$$

où  $\gamma_{j_0, j_1, j_2}$  est un paramètre dépendant des modes  $(j_0, j_1, j_2)$ ,  $\rho$  est la masse volumique et  $\bar{c}$  est la vitesse moyenne des phonons acoustiques ( $3/\bar{c} = 1/c_{LA} + 2/c_{TA}$ ). La force du couplage est proportionnelle au produit des trois énergies des phonons en jeu. Cette forme d'expression pour  $P$  apparaît de façon exacte pour certains cas limites (modèle d'un continuum élastique [53], dans la limite des faibles vecteurs d'onde, ou encore pour un cristal à une dimension).

Cependant, les coefficients  $\gamma_{j_0, j_1, j_2}$  sont assez mal connus. Par contre, on peut avoir accès expérimentalement aux constantes de Grüneisen de certains modes de phonon, définies par :

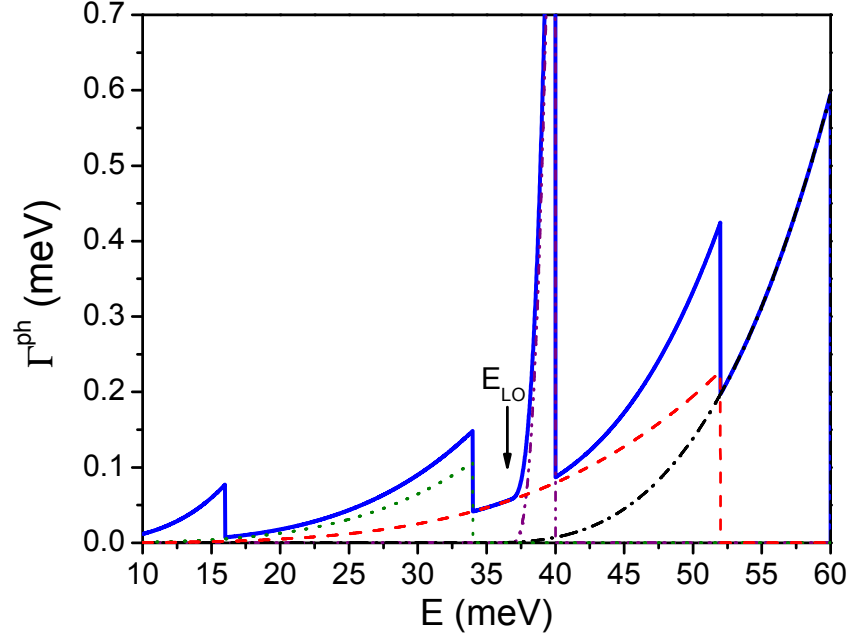
$$\frac{\partial \omega(\mathbf{q}, j)}{\omega(\mathbf{q}, j)} = -\gamma(\mathbf{q}, j) \frac{\partial V}{V} \quad (3.27)$$

La relation entre ces constantes  $\gamma(\mathbf{q}, j)$  et  $\gamma_{j_0, j_1, j_2}$  est étudiée dans l'ouvrage [53] :  $\gamma(\mathbf{q}, j_0)$  s'exprime en fonction des différents  $\gamma_{j_0, j_1, j_2}$ . Cependant on ne peut pas extraire en retour les coefficients  $\gamma_{j_0, j_1, j_2}$  de manière simple. On utilise l'approximation utilisée par [54], qui consiste à utiliser une constante de Grüneisen indépendante des modes concernés. Cette constante sera prise égale à celle de  $\gamma(\mathbf{0}, \text{LO})$  mesurée dans GaAs. On prendra  $\gamma = 1.3$  dans la suite [55, 56].

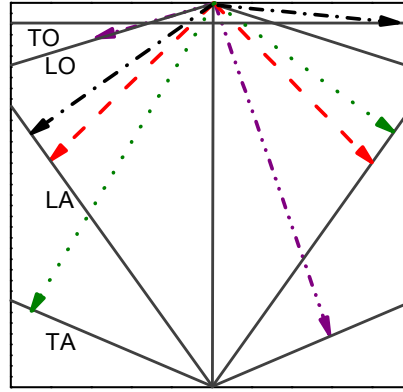
#### 3.4.3 Calcul de l'instabilité induite par l'anharmonicité

Comme le mode de phonon-LO  $|1_{sp}\rangle$  est formé par des phonons massifs de faibles vecteurs d'onde, la conservation de la quantité de mouvement dans l'équation 3.24 implique une désintégration en une paire de phonons avec des vecteurs d'onde opposés. Par conséquent, en injectant l'expression de  $V_a$  (Eq. 3.24) dans l'équation 3.6b,

### 3.4. Conséquences de l'anharmonicité du cristal pour les polarons



(a)



(b)

FIG. 3.3: (a)  $\Gamma^{ph}$  en fonction de l'énergie : Calcul complet en ligne continue ; canal LA+LA en ligne tiretée ; canal LA+TA en ligne pointillée ; canal LA+TO en ligne tiretée-pointillée ; canal TA+LO en ligne tiretée-double-pointillée (à température nulle). (b) Schéma des différents processus anharmoniques correspondants.

### Chapitre 3. Relaxation des polarons

on a approximativement à basse température :

$$\Gamma^{\text{ph}}(E) = \frac{\pi \hbar^3}{8V\rho^3} \sum_{\mathbf{k}_1, j_1, \mathbf{k}_2, j_2} \delta_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2} \frac{|P(\mathbf{0}, LO; \mathbf{k}_1, j_1; \mathbf{k}_2, j_2)|^2}{\omega_{LO} \omega_{\mathbf{k}_1, j_1} \omega_{\mathbf{k}_2, j_2}} \delta(E - \hbar\omega_{\mathbf{k}_1, j_1} - \hbar\omega_{\mathbf{k}_2, j_2}) \quad (3.28)$$

Nous avons vérifié que le fait de considérer la décomposition exacte de  $|1_{sp}\rangle$  sur les modes de vecteurs d'onde non nuls introduirait des corrections négligeables. Dans ce cas, la conservation de l'impulsion des phonons n'est plus stricte, mais  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$  reste au voisinage du centre de zone.

$\Gamma^{\text{ph}}(E)$  peut être décomposé suivant ses contributions dues aux différents canaux  $(j_1, j_2)$  :

$$\Gamma^{\text{ph}}(E) = \sum_{(j_1, j_2)} \Gamma_{(j_1, j_2)}^{\text{ph}}(E) \quad (3.29)$$

En utilisant l'équation 3.26, on peut exprimer chacune de ces contributions comme :

$$\Gamma_{(j_1, j_2)}^{\text{ph}}(E) = \frac{\pi \hbar^3 \gamma^2}{2V\rho\bar{c}^2} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} \omega_{LO} \omega_{\mathbf{k}_1, j_1} \omega_{\mathbf{k}_2, j_2} \delta_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2} \delta(E - \hbar\omega_{\mathbf{k}_1, j_1} - \hbar\omega_{\mathbf{k}_2, j_2}) \quad (3.30)$$

Comme dans la référence [51], on utilise un modèle de Debye continu et isotrope pour les phonons. La largeur induite par un canal  $(j_1, j_2)$  donné peut s'exprimer :

$$\Gamma_{(j_1, j_2)}^{\text{ph}}(E) = \frac{\hbar^2 \gamma^2}{4\pi\rho\bar{c}^2 c_{j_1}^2 (c_{j_1} + c_{j_2})} \omega_{LO} \omega_{j_1}^3 \omega_{j_2} \quad (3.31)$$

où  $c_j$  est la vitesse du son de la branche  $j$  pour les phonons acoustiques ( $c_{j_2} = \partial\omega_{j_2}/\partial k_{j_2}$  pour les branches optiques). Dans l'équation 3.31,  $\omega_{j_1}$  et  $\omega_{j_2}$  sont les pulsations de phonons qui satisfont les deux deltas dans l'équation 3.30.

Dans les calculs présentés dans la suite, les énergies de Debye utilisées sont  $E_d^{LA} = 26$  meV,  $E_d^{TA} = 8$  meV et  $E_d^{LO} = 32$  meV, alors que  $E_{LO} = 36.7$  meV au centre de zone et  $E_{TO} = 34$  meV (branche TO supposée non-dispersive). La vitesse moyenne des phonons acoustiques est de  $\bar{c} = 2650$  m/s.

Pour une température non-nulle, cette largeur doit être multipliée par  $(1+n_{j_1})(1+n_{j_2})$ , où  $n_{j_i}$  est le facteur d'occupation à l'énergie  $\hbar\omega_{j_i}$ . La figure 3.3 montre le calcul de  $\Gamma^{\text{ph}}$  en fonction de l'énergie du polaron, ainsi que les contributions des différents canaux :  $\Gamma_{(TA, LA)}^{\text{ph}}$ ,  $\Gamma_{(LA, LA)}^{\text{ph}}$  (canal de Klemens),  $\Gamma_{(TA, LO)}^{\text{ph}}$  (canal de Vallée-Bogani) et  $\Gamma_{(LA, TO)}^{\text{ph}}$ .

On obtient des variations très fortes de  $\Gamma^{\text{ph}}$  dans la gamme d'énergie pouvant être obtenues dans les boîtes InAs/GaAs. Ce comportement diffère radicalement de la valeur constante  $\Gamma^{\text{ph}}(E_{LO})$  qui correspond au modèle semi-classique. Afin de comprendre qualitativement ces variations, considérons uniquement le canal de Klemens (LA+LA) :

### 3.4. Conséquences de l'anharmonicité du cristal pour les polarons

$$\Gamma_{(LA,LA)}^{\text{ph}}(E) = \frac{\gamma^2}{128\pi\hbar^2\rho\bar{c}^2c_{LA}^3}\omega_{LO}E^4 \quad (3.32)$$

La dépendance en  $E^4$  provient de deux contributions : d'une part, la densité des états finaux à deux phonons LA, chacun d'énergie égale à la moitié de celle du polaron, augmente en  $E^2$  (dans le model de Debye) ; d'autre part, la force du couplage anharmonique correspondant augmente aussi comme  $E^2$ . Le taux de désintégration  $\Gamma_{(LA,LA)}^{\text{ph}}(E)$  augmente ainsi comme  $E^4$  jusqu'à ce que l'énergie des phonons LA émis atteigne sa valeur maximum (  $\simeq 52$  meV pour l'émission de deux phonons LA de bord de zone).

Par ailleurs, nous avons vérifié que les hypothèses effectuées en 3.3.2 étaient valables :

- le déplacement énergétique (la transformée de Hilbert de  $\Gamma^{\text{ph}}(E)$ ) est négligeable devant les variations de  $E$  étudiées ici : son ordre de grandeur est de 0.1 meV, sauf aux bords des canaux anharmoniques.
- On a vérifié également que  $d\Gamma^{\text{ph}}/dE \ll 1$ , sauf aux bords des canaux anharmoniques. Par conséquent, la relaxation de la population des polarons est bien exponentielle.

Sur la figure 3.3, on trouve que le canal (LA,LA) est le mécanisme dominant dans le massif (puisque  $\Gamma_{LO} = \Gamma^{\text{ph}}(E_{LO})$ ). Cependant, il faut noter qu'aux environs de  $E_{LO}$ , les calculs sont très sensibles aux paramètres utilisés pour les énergies de phonons de bord de zone. Dans nos calculs, le canal (TA,LA) se termine juste en-dessous de  $E_{LO}$ , alors que le pic très prononcé correspondant au canal (TA,LO) se situe juste au-dessus de  $E_{LO}$ . Ceci explique pourquoi le mécanisme dominant dans GaAs massif est sujet à controverse [47, 49, 51]. Par contre, dans le cas des polarons, il existe de larges plages d'énergie où l'on peut aisément déterminer quel est le mécanisme dominant : c'est la cas entre 40 et 50 meV où le mécanisme (LA,LA) domine clairement, ou bien, comme nous le verrons dans la suite, (LA,TA) domine aux énergies comprises entre 15 et 30 meV.

En incluant le calcul de la figure 3.3 avec celui de  $|\beta_i|^2$  en fonction de l'énergie du polaron  $E_{pol} = E_{i=1,2}$ , on calcule le temps de vie du polaron  $\tau_{pol} = \hbar/\Gamma_i$  (voir équation 3.6a). Ce calcul, reporté sur la figure 3.4 en ligne pleine, est comparé aux résultats expérimentaux obtenus par le groupe de Sheffield [12] (symboles). On observe un assez bon accord sur toute la gamme d'énergie sondée expérimentalement, et ceci sans paramètre ajustable. En particulier, contrairement au modèle semi-classique, on explique la décroissance du temps de relaxation pour les énergies élevées. Ceci s'explique en remarquant que les variations de  $\Gamma^{\text{ph}}$  deviennent plus fortes que celles de  $|\beta_i|^2$  (en d'autres termes,  $|d\Gamma^{\text{ph}}/dE| < |d|\beta_i|^2/dE|$ ). On est ainsi dans un régime totalement opposé au semi-classique : celui-ci fixe  $\Gamma^{\text{ph}}$  comme une constante, et explique les variations du temps de vie du polaron uniquement par  $|\beta_i|^2$  ; ici, nous montrons que les variations de  $\Gamma^{\text{ph}}$  peuvent l'emporter. Ainsi les différences entre les deux modèles ne sont pas seulement quantitatives, mais aussi qualitatives.

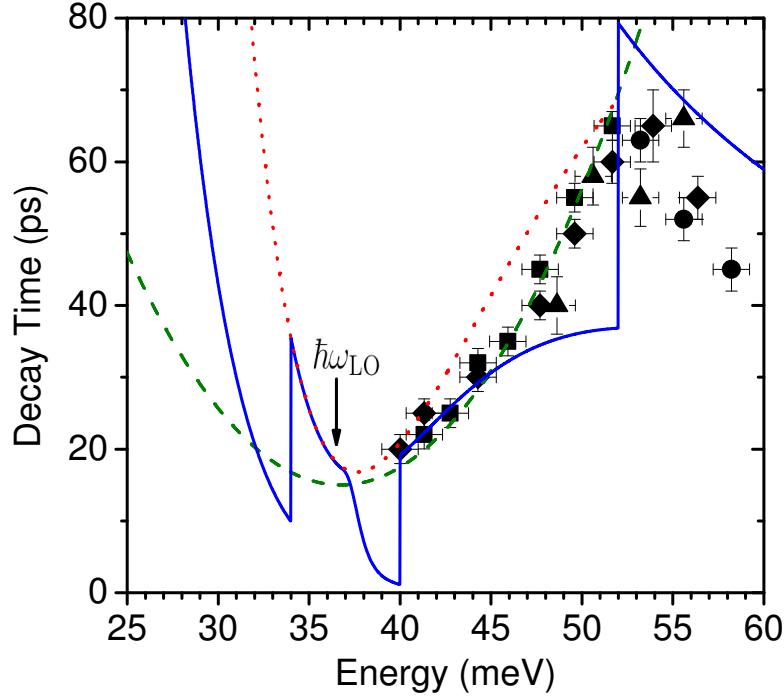


FIG. 3.4: Temps de vie du polaron en fonction de son énergie : résultats expérimentaux de la référence [12] en symboles, calcul complet (présenté dans le texte) en ligne pleine, calcul avec seulement le canal LA+LA en ligne pointillée et meilleur ajustement semi-classique en ligne tiretée ( $V_{sp(\text{fit})} = 8\text{meV}$ ,  $\tau_{LO} = 15\text{ps}$ ).

Enfin, on peut souligner les limites du modèle : en particulier, les dispersions isotropes et linéaires employées donnent une mauvaise précision des calculs aux alentours des bords de zones. En réalité, on n'aura pas de discontinuité aussi marquée du fait que les énergies de bord de zone varient en fonction de la direction du vecteur d'onde.

### 3.5 Temps de vie dans la gamme térahertz

Alors que le modèle semi-classique prédisait un comportement symétrique par rapport à la résonance phonon-LO, notre modèle prédit des temps beaucoup plus longs pour la partie basse énergie ( $E < E_{LO}$ ), dépassant rapidement la centaine de picosecondes (voir fig. 3.4). Nos calculs ont stimulé des expériences dans cette région de basse énergie (réalisées à l'Université de Sheffield). Les boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs ont, dans les conditions usuelles de croissance, des énergies

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

---

intrabandes de l'ordre de 30 à 60 meV. Afin de descendre en dessous du Restrahlen<sup>3</sup>, la technique la plus simple consiste à recuire les échantillons de boîte quantique. Lors du recuit, les atomes diffusent : on obtient alors des boîtes plus grandes et moins confinantes. Ceci a pour effet de réduire l'énergie de transition  $s$ - $p$ .

La région spectrale en dessous du Restrahlen est d'autant plus intéressante qu'elle appartient à la gamme térahertz (celle-ci est située en dessous de 10Thz, soit 41 meV), qui suscite beaucoup d'efforts actuellement afin de mettre au point des sources et détecteurs performants [57]. Une des sources employées dans ce domaine spectral sont les lasers à cascades quantiques. Cependant, leur fonctionnement est actuellement limité aux températures cryogéniques du fait des mécanismes de relaxation rapides par les diffusions élastiques ayant lieu dans les gaz d'électrons bidimensionnels. Des structures à base de boîtes quantiques pourraient constituer une alternative intéressante.

Afin d'interpréter précisément les résultats expérimentaux, quelques raffinements seront apportés au modèle de relaxation anharmonique exposé précédemment :

- Alors que jusqu'ici on a pris un couplage de Fröhlich  $V_{sp}$  constant, on modélisera le recuit des boîtes afin de rendre compte de la décroissance de  $V_{sp}$  pour des boîtes plus grandes et moins confinantes. Ceci est d'autant plus nécessaire que le recuit permet de faire varier les paramètres des boîtes sur une très grande plage (section 3.5.1).
- Nous prenons en compte les 2 modes phonons-LO du ternaire  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ . Nous n'avons pour l'instant considéré qu'un seul mode phonon ayant les propriétés de celui du GaAs massif. Sur les échantillons recuits, des expériences de magnéto-transmission nous apportent des renseignements sur un comportement à 2 modes de phonons-LO (section 3.5.2).
- Alors que pour l'instant nous n'avons considéré que le couplage de Fröhlich résonnant, nous étudierons l'effet du terme anti-résonnant qui joue un rôle non-négligeable loin de la résonance (section 3.5.3).

Pour des boîtes d'énergies de transition très faibles, on étudiera du point de vue théorique la transition entre relaxation des polarons par anharmonicité et relaxation par émission de phonons acoustiques (section 3.5.5). Enfin on prendra en compte la thermalisation possible entre les états  $p_x$  et  $p_y$  (section 3.5.6), qui interviendra dans la simulation des expériences pompe-sonde (section 3.6).

#### 3.5.1 Modélisation des boîtes recuites

Afin de modéliser simplement le recuit des boîtes, on garde une modélisation en potentiel uniforme à l'intérieur des boîtes et on suppose que les dimensions de celles-ci restent dans des proportions inchangées.

---

<sup>3</sup>Raie intense d'absorption due aux phonons optiques du substrat, comprise entre 30 et 36 meV pour le GaAs

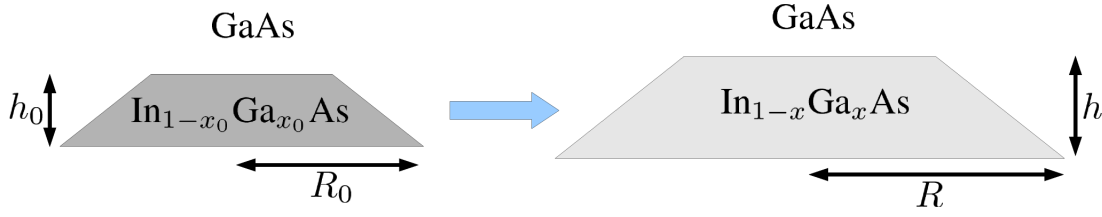


FIG. 3.5: Schéma de la modélisation du recuit : la boîte avant recuit, de dimensions  $(R_0, h_0)$  et de composition  $x_0$  est représenté à gauche, celle après recuit, de dimensions  $(R, h)$  et de composition  $x$ , à droite.

Dans un premier temps, on choisit les paramètres  $(R_0, h_0, x_0)$  des boîtes  $(\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As})$  initiales afin de rendre compte à la fois des énergies intrabandes, et interbandes (PL et PLE). Lors du recuit, si l'on considère que la quantité de In est conservée dans la boîte, les paramètres de la boîte recuite  $(R, h, x)$  vérifient  $V_0 \times x_0 = V \times x$  où  $V$  est le volume (soit  $R_0^2 \times h_0 \times x_0 = R^2 \times h \times x$ ). De plus, on fait l'hypothèse d'un ratio d'aspect constant  $R_0/h_0 = R/h$ . Lorsque l'on varie la composition  $x$ , les dimensions des boîtes sont alors données par  $R = R_0(x_0/x)^{1/3}$  et  $h = h_0(x_0/x)^{1/3}$ .

L'échantillon de boîtes avant recuit présente une énergie intrabande de 49.5 meV, une énergie de PL de 1109 meV, et une séparation entre le premier niveau excité en PLE et le fondamental de  $\Delta E_{\text{PLE}} = 70.5$  meV. Cette échantillon est modélisé avec les paramètres suivants :  $x_0 = 0.45$ ,  $Q_e = 0.70$ ,  $R_0 = 122\text{\AA}$  ( $R_0^{\text{min}} = R/2$ ) et  $h_0 = 49\text{\AA}$ . Sur la figure 3.6, on a représenté les énergies de transition intrabandes et interbandes simulées et mesurées lors du recuit (les points expérimentaux sont représentés par des symboles sur ces figures.) Les calculs (lignes) sont effectués aussi bien pour  $x$  supérieur à  $x_0$  (simulation du recuit) que pour  $x$  inférieur à  $x_0$  (cas purement hypothétique du processus inverse). Pour chaque jeu de paramètres, on effectue le calcul des états électroniques des états  $s$  et  $p$ , ce qui nous permettra dans la suite de calculer le couplage de Fröhlich. L'énergie de la transition  $s$ - $p$  diminue de 49 à 10 meV lorsque l'on passe d'une concentration en gallium de  $\sim 0.45$  à  $0.93$ , avec un rayon correspondant qui augmente de  $\sim 12$  à  $\sim 25$  nm.

### 3.5.2 Ternaire à 2 modes de phonons-LO

Nous avons jusqu'ici considéré que les modes de phonons-LO présents avaient l'énergie de ceux du GaAs massif. En effet, cette hypothèse avait permis de rendre compte assez précisément des expériences de magnéto-transmission dans les références [13, 27, 58]. Cependant, des expériences de magnéto-transmission sur ces boîtes recuites mettent en évidence un faible anticroisement juste en dessous du Reststrahlen (vers 31 meV). Ceci nous permet d'affiner notre modélisation en prenant en compte un comportement des phonons optiques correspondant à celui d'un ternaire

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

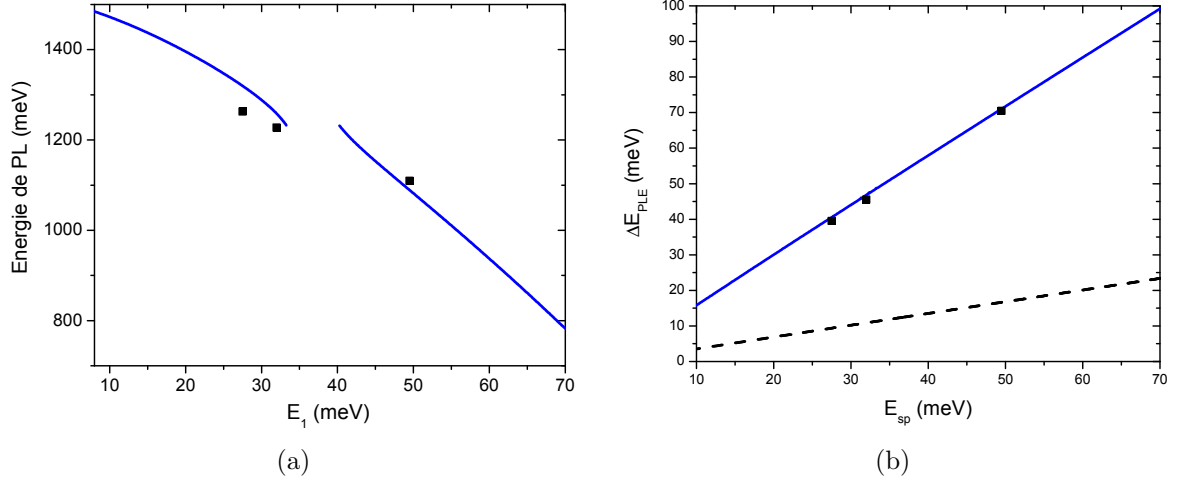


FIG. 3.6: Évolution des énergies lors du recuit. (a) Energie de PL en fonction de l'énergie intrabande entre niveaux polarons  $E_1$ . (b) Écart énergétique entre le premier niveau excité et le fondamental excitonique (ligne pleine) et énergie intrabande  $E_{sp}$  pour les trous (ligne pointillée) en fonction de l'énergie intrabande électronique  $E_{sp}$ .

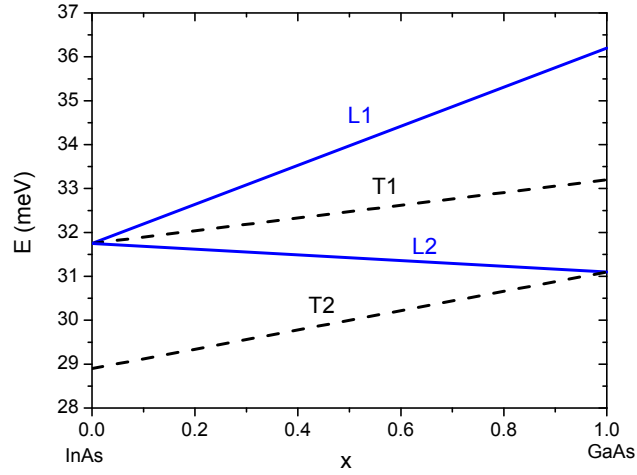


FIG. 3.7: Modes de phonons optiques pris pour le ternaire  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ . L'énergie des modes de phonons de In ont été augmentés de 2 meV afin de rendre compte de l'effet des contraintes dans les boîtes.



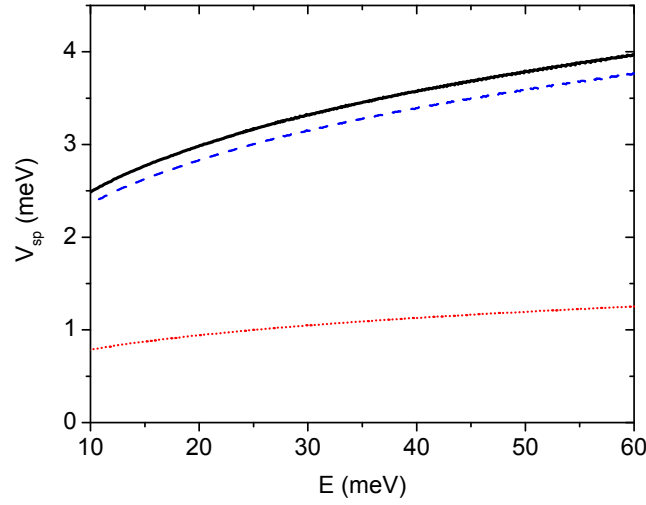


FIG. 3.8: Couplages de Fröhlich  $V_{sp,1}$  (ligne tiretée),  $V_{sp,2}$  (ligne pointillée) et couplage efficace  $V_{sp}^{\text{eff}} = \sqrt{V_{sp,1}^2 + V_{sp,2}^2}$  (ligne pleine) en fonction de l'énergie de transition électronique  $E_{sp}$ . Les fonctions d'ondes électroniques sont calculées via la modélisation de l'interdiffusion présentée en 3.5.1. Pour les modes de phonons-LO, on considère le ternaire  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ .

à 2 modes. Nous verrons ensuite les conséquences sur la relaxation des polarons.

Du point de vue des phonons optiques, le matériau ternaire  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  a un comportement de type « 2 modes », c'est-à-dire qu'il existe 2 branches distinctes de phonon LO et TO [59, 60]. L'évolution de l'énergie de ces modes en fonction de la composition  $x$  peut être décrite par une interpolation linéaire sur la figure 3.7, où nous avons utilisé les paramètres de la référence [59]. Les modes numérotés 1 (L1 et T1) correspondent à ceux du GaAs dans la limite où  $x = 1$  alors que ceux numérotés 2 (L2 et T2) correspondent à ceux de InAs dans la limite où  $x = 0$  (L et T indiquant le caractère longitudinal ou transverse).

D'après la référence [60], les coefficients de Fröhlich associés à chacun des deux modes de phonons-LO (L1 et L2) s'écrivent :

$$C_{f,1} = e \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0\epsilon_r(\infty)\omega_{L1}} (\omega_{L1}^2 - \omega_{T1}^2) \frac{\omega_{T2}^2 - \omega_{L1}^2}{\omega_{L2}^2 - \omega_{L1}^2}} \quad (3.33)$$

$$C_{f,2} = e \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0\epsilon_r(\infty)\omega_{L2}} (\omega_{L2}^2 - \omega_{T2}^2) \frac{\omega_{L2}^2 - \omega_{T1}^2}{\omega_{L2}^2 - \omega_{L1}^2}} \quad (3.34)$$

On a représenté sur la figure 3.8 les couplages de Fröhlich  $V_{sp,i}$  ( $i = 1, 2$ ) entre  $|p, 0\rangle$  et  $|s, 1_{sp_x, i}\rangle$  ( $i$  désigne le mode de phonons-LO  $Li$ ), ainsi que le couplage efficace total  $V_{sp}^{\text{eff}} = \sqrt{V_{sp,1}^2 + V_{sp,2}^2}$ .

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

L'état polaron (en l'absence de champ magnétique) s'écrit alors :

$$|\psi\rangle = \alpha|p_x, 0\rangle + \beta_{L1}|s, 1_{sp_x, 1}\rangle + \beta_{L2}|s, 1_{sp_x, 2}\rangle \quad (3.35)$$

Les mesures de magnéto-transmission effectuées sur un des échantillons recuits sont présentées sur la figure 3.9. En prenant en compte les deux modes de phonons, on a calculé les énergies des différents niveaux polarons ainsi que les forces d'oscillateurs. Ces calculs font intervenir les niveaux électroniques de symétrie cylindrique  $|s\rangle$ ,  $|p^-\rangle$  et  $|p^+\rangle$  (cf chapitre 2). Afin d'ajuster les résultats expérimentaux, on a pris comme paramètre ajustable la composition vue par les phonons. La composition utilisée pour effectuer les calculs électroniques ( $x = 0.75$ ) prédit un anticroisement trop grand au niveau du mode de phonon In. Un meilleur ajustement est trouvé en utilisant  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  pour les modes de phonons. De plus, on ajoute un décalage positif de 2 meV aux énergies des phonons de In massif  $\hbar\omega_{\text{LO, In}}$  et  $\hbar\omega_{\text{TO, In}}$  par rapport aux valeurs de la littérature, afin d'obtenir un bon ajustement de la position de l'anticroisement. Ce décalage est attribué aux contraintes qui ont pour effet d'augmenter l'énergie des modes de phonons.

L'hamiltonien pour les états polarons à 2 modes phonons s'écrit dans la base  $(|p_x, 0\rangle, |s, 1_{sp_x, 1}\rangle, |s, 1_{sp_x, 2}\rangle)$  :

$$H_{eff}(\varepsilon) = \begin{pmatrix} E_p & V_{sp,1} & V_{sp,1} \\ V_{sp,2} & E_s + \hbar\omega_{L1} - i\frac{\Gamma_1(\varepsilon)}{2} & 0 \\ V_{sp,2} & 0 & E_s + \hbar\omega_{L2} - i\frac{\Gamma_2(\varepsilon)}{2} \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

Le taux de relaxation du polaron s'écrit :

$$\Gamma(E) = |\beta_{L1}|^2 \Gamma_{L1}^{ph}(E) + |\beta_{L2}|^2 \Gamma_{L2}^{ph}(E) \quad (3.37)$$

où les élargissements correspondants à chacun des modes s'écrivent :

$$\Gamma_{L1}^{ph}(E) = \sum_{j,j'} \frac{\hbar\gamma^2}{2\pi\rho^2 c^2 c_j^2 (c_j + c_{j'})} \omega_{L1} \omega_j^3 \omega_{j'} \quad (3.38)$$

$$\Gamma_{L2}^{ph}(E) = \sum_{j,j'} \frac{\hbar\gamma^2}{2\pi\rho^2 c^2 c_j^2 (c_j + c_{j'})} \omega_{L2} \omega_j^3 \omega_{j'} \quad (3.39)$$

La seule différence entre les deux expressions ci-dessus est la pulsation du mode  $L1$  ou  $L2$ . Si on néglige la variation de dispersion des modes de phonons finaux en fonction de la composition, on peut les exprimer en fonction de l'élargissement  $\Gamma^{ph}$  dans le cas à 1 seul mode phonon de pulsation  $\omega_{\text{LO}}$  étudié précédemment :

$$\Gamma_{L1/2}^{ph}(E) = \frac{\omega_{L1/2}}{\omega_{\text{LO}}} \Gamma^{ph}(E) \quad (3.40)$$

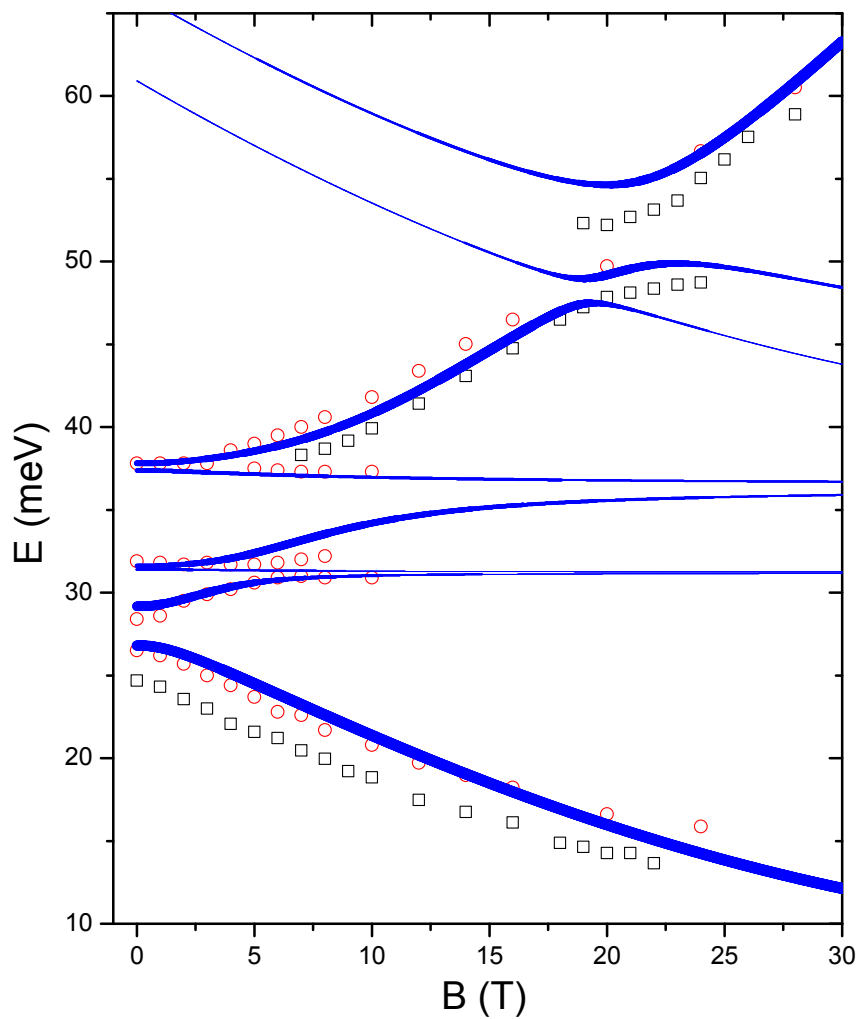


FIG. 3.9: Magnéto-transmission pour un échantillon recuit. Les symboles sont les mesures expérimentales des minima de transmission (les carrés et les cercles sont les mesures sur l'échantillon respectivement avant et après amincissement du substrat afin de réduire la largeur du Restrahlen). Les calculs des niveaux de polarons sont représentés en ligne, l'épaisseur du trait étant proportionnelle à la racine carré de la force d'oscillateur. Pour les modes de phonons-LO, on a considéré les 2 modes du ternaire  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ .

#### 3.5.3 Terme anti-résonnant

Pour l'instant nous avons considéré seulement le couplage de Fröhlich résonnant entre  $|p_x, 0\rangle$  et  $|s, 1_{sp_x}\rangle$ . Nous avons négligé les couplages anti-résonnants, en particulier celui existant entre  $|s, 0\rangle$  et  $|p_x, 1_{sp_x}\rangle$ . Cette approximation est justifiée tant que  $|E_{sp} - E_{LO}| \ll E_{sp} + E_{LO}$ . Pour les énergies  $E_{sp}$  inférieures à une vingtaine de meV, cette approximation n'est plus vraiment justifiée. Il faut alors prendre en compte ces termes anti-résonnants. Pour étudier le rôle de ces derniers, revenons au modèle à 1 mode de phonon-LO. Les deux polarons de plus basse énergie sont alors de la forme :

$$|\psi_0\rangle = \gamma_0|s, 0\rangle + \delta_0|p_x, 1_{sp_x}\rangle + \eta_0|p_y, 1_{sp_y}\rangle \quad (3.41)$$

$$|\psi_{1,x}\rangle = \alpha_1|p_x, 0\rangle + \beta_1|s, 1_{sp_x}\rangle \quad (3.42)$$

On évalue le taux de relaxation  $\Gamma_{1 \rightarrow 0}/\hbar$  entre ces deux niveaux, en appliquant la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_{1 \rightarrow 0} = 2\pi \sum_{\nu} |\langle \psi_{1,x} | V_a | \psi_0, \nu \rangle|^2 \delta(E_1 - E_0) \quad (3.43)$$

où  $\nu$  représente un état multi-phonons. Le couplage anharmonique peut se décomposer sur la base d'états découplés :

$$\langle \psi_{1,x} | V_a | \psi_0, \nu \rangle = \beta_1^* \gamma_0 \langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle + \alpha_1^* \delta_0 \langle 0 | V_a | 1_{sp_x}, \nu \rangle \quad (3.44)$$

Il faut maintenant déterminer si l'interférence qui apparaît dans l'expression ci-dessus entre le terme résonnant (premier terme) et celui anti-résonnant (deuxième terme) va être constructif ou destructif.  $\langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle$  et  $\langle 0 | V_a | 1_{sp_x}, \nu \rangle$  ont même module, mais leur phase relative n'est pas évidente à déterminer.

Rappelons tout d'abord la définition du mode  $|1_{sp_x}\rangle$  :

$$|1_{sp_x}\rangle = \sum_q \frac{\langle s, 1_q | H_f | p_x, 0 \rangle}{V_{sp_x}} |1_q\rangle \quad (3.45)$$

Ceci permet de développer les deux couplages étudiés sur la base des vecteurs d'ondes :

$$\langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle = \frac{1}{V_{sp_x}} \sum_q \langle s, 1_q | H_f | p_x, 0 \rangle^* \langle 1_q | V_a | \nu \rangle \quad (3.46)$$

$$\langle 0 | V_a | 1_{sp_x}, \nu \rangle = \frac{1}{V_{sp_x}} \sum_q \langle s, 1_q | H_f | p_x, 0 \rangle \langle 0 | V_a | 1_q, \nu \rangle \quad (3.47)$$

Les états  $|\nu\rangle$  peuvent être exprimés, dans le cas d'un couplage anharmonique cubique, sous la forme :

### Chapitre 3. Relaxation des polarons

---

$$|\nu\rangle = |1_{\mathbf{k}_1, j_1}, 1_{\mathbf{k}_2, j_2}\rangle \quad (3.48)$$

Étant donné la conservation de l'impulsion des phonons par le terme anharmonique, on a forcément  $\mathbf{q}_0 = -\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$

D'après l'équation 3.24, on peut écrire la partie de l'hamiltonien anharmonique qui fait intervenir une branche LO sous la forme  $V_a = \sum_{\mathbf{q}} (a_{\mathbf{q}, \text{LO}} + a_{-\mathbf{q}, \text{LO}}^+) V'_a(\mathbf{q})$  où  $V'_a(\mathbf{q})$  couplent les phonons de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_1$  et  $\mathbf{k}_2$  avec  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{q}$ .

$$\langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle = \frac{1}{V_{sp_x}} \langle s, 1_{-\mathbf{q}_0} | H_f | p_x, 0 \rangle^* \langle 0 | V'_a | \nu \rangle \quad (3.49)$$

$$\langle 0 | V_a | 1_{sp_x}, \nu \rangle = \frac{1}{V_{sp_x}} \langle s, 1_{\mathbf{q}_0} | H_f | p_x, 0 \rangle \langle 0 | V'_a | \nu \rangle \quad (3.50)$$

Comme l'hamiltonien de Fröhlich est de la forme  $H_f = \frac{iC_f}{q} (a_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} - a_{\mathbf{q}}^+ e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}})$ , on a :

$$\langle s, 1_{-\mathbf{q}_0} | H_f | p_x, 0 \rangle = \frac{-iC_f}{q_0} \langle s | e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle \quad (3.51)$$

$$\langle s, 1_{\mathbf{q}_0} | H_f | p_x, 0 \rangle = \frac{-iC_f}{q_0} \langle s | e^{-i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle \quad (3.52)$$

Les deux couplages anharmoniques recherchés s'écrivent alors :

$$\langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle = \frac{iC_f}{qV_{sp_x}} \langle s | e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle^* \langle 0 | V'_a | \nu \rangle \quad (3.53)$$

$$\langle 0 | V_a | 1_{sp_x}, \nu \rangle = \frac{-iC_f}{qV_{sp_x}} \langle s | e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle \langle 0 | V'_a | \nu \rangle \quad (3.54)$$

Or, comme les fonctions d'ondes sont prises réelles :

$$\langle s | e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle^* = \langle s | e^{-i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}} | p_x \rangle \quad (3.55)$$

On a donc :

$$\begin{aligned} \Gamma_{1 \rightarrow 0} &= 2\pi \sum_{\nu} |\beta_1^* \gamma_0 - \alpha_1^* \delta_0|^2 |\langle 1_{sp_x} | V_a | \nu \rangle|^2 \delta(E_1 - E_0) \\ &= |\beta_1^* \gamma_0 - \alpha_1^* \delta_0|^2 \Gamma^{ph}(E_1 - E_0) \end{aligned} \quad (3.56)$$

Il ne nous reste plus qu'à évaluer les composantes des polarons. Lorsque l'on est très loin de la résonance ( $E_{\text{LO}} - E_{sp} \gg V_{sp}$ ), on peut utiliser pour cela la théorie des perturbations. Remarquons tout d'abord que l'équation 3.55 entraîne l'égalité :

$$\langle s, 1_{sp_x} | H_f | p_x, 0 \rangle = \langle s, 0 | H_f | p_x, 1_{sp_x} \rangle \quad (3.57)$$

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

Les composantes sont alors données par :

$$\begin{aligned}\gamma_0 &\simeq 1 & \delta_0 &\simeq -\frac{V_{sp_x}}{E_{LO} + E_{sp}} \\ \alpha_1 &\simeq 1 & \beta_1 &\simeq -\frac{V_{sp_x}}{E_{LO} - E_{sp}}\end{aligned}\tag{3.58}$$

Ceci nous permet d'avoir une expression simple pour le taux de relaxation des polarons (valable loin de la résonance) :

$$\begin{aligned}\Gamma_{1 \rightarrow 0} &= \left| \frac{V_{sp_x}}{E_{LO} - E_{sp}} - \frac{V_{sp_x}}{E_{LO} + E_{sp}} \right|^2 \Gamma^{ph}(E_1 - E_0) \\ &= \frac{V_{sp_x}^2}{(E_{sp} - E_{LO})^2} \frac{4E_{sp}^2}{(E_{LO} + E_{sp})^2} \Gamma^{ph}(E_1 - E_0)\end{aligned}\tag{3.59}$$

On remarque que la prise en compte du couplage de Fröhlich anti-résonnant entraîne le facteur correctif  $f = \frac{4E_{sp}^2}{(E_{LO} + E_{sp})^2}$  dans l'équation ci-dessus par rapport au cas où l'on considère un niveau fondamental  $|s,0\rangle$  non-perturbé. L'interférence est donc constructive ( $f > 1$ ) pour  $E_{sp} > E_{LO}$  et destructive ( $f < 1$ ) pour  $E_{sp} < E_{LO}$ . Dans le cas limite où la séparation électronique  $E_{sp}$  est négligeable devant l'énergie du phonon optique  $E_{LO}$ , on a  $f = 4E_{sp}^2/E_{LO}^2$  : ce terme inhibe fortement les processus anharmoniques dans cette région. Cependant, comme nous allons le voir dans la suite (3.5.5), l'émission de phonons acoustiques n'est efficace qu'aux très faibles énergies  $E_{sp}$ .

#### 3.5.4 Temps de vie des polarons : comparaison théorie-expérience

La comparaison théorie-expérience pour le temps de vie des polarons en dessous du Reststrahlen est présentée sur la figure 3.10. Les mesures ont été réalisées par le groupe de Sheffield sur les échantillons décrits auparavant. Pour les calculs, on a pris en compte les termes anti-résonnants. Le temps de vie calculé est montré pour un seul mode phonon-LO (celui du GaAs) en ligne pointillée, et en prenant en compte les 2 modes d'un ternaire  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  en ligne pleine. Afin d'obtenir un bon ajustement, on a utilisé la valeur de Grüneisen  $\gamma = 4.0$  pour les couplages anharmoniques faisant intervenir de phonons TA (c'est-à-dire TA+LA et TA+TA). On a gardé  $\gamma = 1.3$  pour les autres couplages anharmoniques, qui jouent ici un rôle minoritaire (notamment LA+LA). Le modèle utilisé donne un assez bon accord, en particulier au niveau de la forte dépendance en énergie du temps de relaxation du polaron.

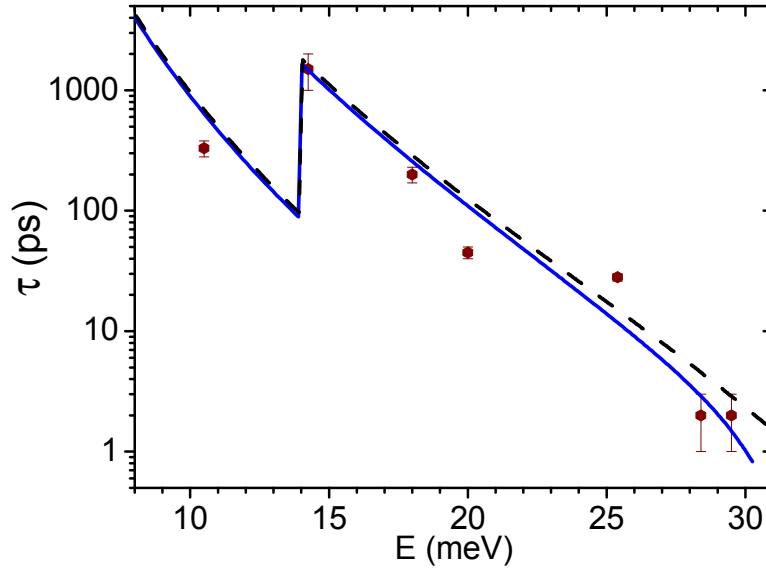


FIG. 3.10: Temps de vie des polarons pour des boîtes recuites, pour des modes de phonons-LO du GaAs massif (ligne tiretée) et pour les phonons-LO d'un ternaire  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  (ligne pleine). Les symboles correspondent aux mesures pompe-sonde.

### 3.5.5 Transition entre anharmonicité et émission de phonons acoustiques

Lorsque l'on abaisse fortement l'énergie de la transition  $s$ - $p$ , on s'attend à ce que les phonons acoustiques jouent un rôle de médiateur direct de la relaxation. En effet, les phonons acoustiques qui sont couplés efficacement aux états électroniques ont une longueur d'onde du même ordre de grandeur que celle des fonctions d'ondes en jeu. Or, l'énergie des phonons acoustiques est de  $\hbar c_s \pi / L \sim 1 \text{ meV}$  pour une dimension caractéristique de  $L = 10 \text{ nm}$ . La relaxation par émission de phonons acoustiques n'est donc (très) efficace que pour des séparations entre niveaux électroniques de l'ordre du meV [43]. D'ailleurs, dans les boîtes de grandes dimensions obtenues par lithographie de puits quantiques, c'est ce mécanisme qui est mis en évidence [61].

On cherche à étudier ici la transition entre les deux régimes de relaxation anharmonique de polaron et d'émission de phonons acoustiques.

Pour ces transitions de très basse énergie (quelques meV), les corrections énergétiques polaroniques sont faibles. On a donc en bonne approximation :  $E_1 - E_0 \simeq E_{sp}$  et  $\gamma_0 \simeq 1$  (l'état polaron considéré est à très forte majorité électronique). Afin d'évaluer la relaxation de  $p_x$  à  $s$  par émission de phonons acoustiques, on calcule :

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

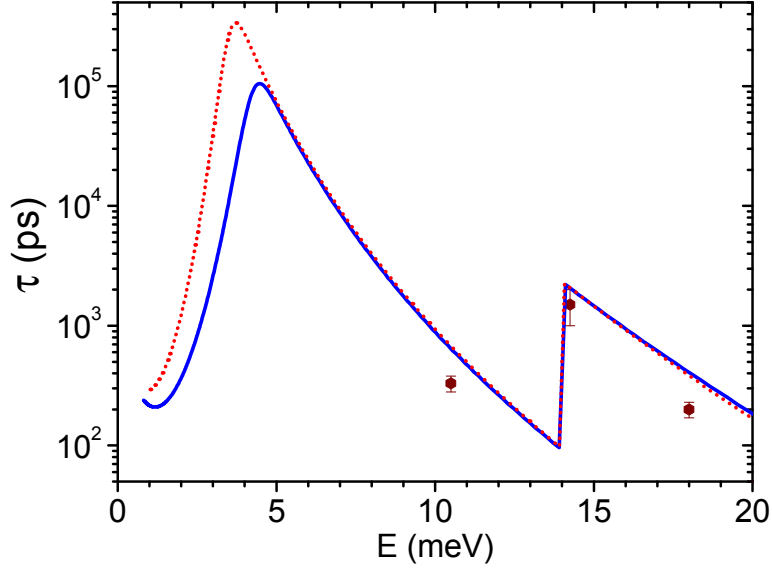


FIG. 3.11: Temps de relaxation des polarons à très basse énergie pour des boîtes  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  de hauteur  $h = 10\text{nm}$  (ligne pointillée) et  $h = 5\text{nm}$  et de rayon  $R$  variable. Le calcul prend en compte à la fois la relaxation anharmonique des polarons et l'émission de phonons acoustiques. Les symboles correspondent aux mesures pompe-sonde de la fig. 3.10.

$$\begin{aligned} \Gamma_{sp_x}(E) &= 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |\langle p_x, 0 | H_d | s, 1_{\mathbf{q}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - E_{sp}) \\ &= \frac{D_c^2 L_{sp}^2}{8\pi c_s^2 \rho (\beta_{sp}^2 - \sigma_{sp}^2)} q^3 \left( \mathcal{D}(\alpha) \frac{1 + 2\alpha^2}{\alpha} - 1 \right) \exp\left(-\frac{q^2 \sigma_{sp}^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (3.60)$$

avec  $q = E/(\hbar c_s)$  et  $\alpha = q\sqrt{(\beta_{sp}^2 - \sigma_{sp}^2)/2}$ . Le calcul est tout à fait similaire à celui effectué en 2.1.2 pour le couplage de Fröhlich (les constantes  $\sigma_{sp}$ ,  $\beta_{sp}$  et  $L_{sp}$ , et la fonction de Dawson  $\mathcal{D}$  avaient été alors définies).

Le temps de relaxation de  $p_x$  à  $s$  à température non-nulle est alors donné par  $1/\tau_{sp_x} = \Gamma_{sp_x}(E_{sp_x})(1 + N(E_{sp_x}))$ . Dans ce calcul, les composantes à 1 phonons-LO sont négligées devant celles à 0 phonons ( $\gamma_0 \simeq \alpha_1 \simeq 1$ ).

Cependant, le recuit des boîtes quantiques auto-assemblées ne permet pas d'obtenir des transitions  $s$ - $p$  d'énergie aussi faible. Dans notre modélisation du recuit, le niveau  $p$  n'est plus confiné pour des énergies  $s$ - $p$  inférieures à 10 meV. On considère ici une boîte de composition fixée  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ , de hauteur  $h$  fixée, et de rayon  $R$  variable. Ceci permet d'avoir des niveaux  $p$  confinés pour des boîtes de grandes dimensions.

Le temps  $\tau$  de relaxation qui prend en compte à la fois la relaxation anharmonique



### Chapitre 3. Relaxation des polarons

des polarons et l'émission de phonons acoustiques ( $\hbar/\tau = \Gamma_1(E) + \Gamma_{sp_x}(E)$ ) est présenté sur la figure 3.11. Le calcul est réalisé ici pour deux hauteurs  $h$  différentes de 50 et 100 Å.

L'émission de phonons acoustiques présente un maximum d'efficacité entre 1 et 2 meV, puis diminue rapidement. Ceci illustre l'effet de « phonon bottleneck » [43]. En étudiant l'expression 3.60, on s'aperçoit que la rapide augmentation est contrôlée en partie par le facteur  $\exp(-q^2\sigma_{sp}^2/2)$ . L'augmentation est ainsi plus forte pour les boîtes ayant une plus grande hauteur  $h$  : la conservation du vecteur d'onde selon l'axe  $z$  est alors plus marquée, ce qui réduit la probabilité d'émission d'un phonon de petite longueur d'onde. De manière générale pour les boîtes de formes aplaties, l'émission de phonons acoustiques se fait préférentiellement selon l'axe  $z$ , étant donné que la conservation du vecteur d'onde  $y$  est moins marquée que dans le plan ( $\sigma < \beta$ ).

La transition entre les deux régimes de relaxation est prévue aux alentours de 4 meV. Alors que l'émission de phonons acoustiques est très sensible aux paramètres des boîtes, la relaxation anharmonique  $y$  est beaucoup moins sensible : les deux courbes correspondant à des hauteurs différentes sont quasiment superposées sur la figure 3.11 lorsque l'anharmonicité est dominante. En effet,  $V_{sp}$  est assez peu sensible aux variations de géométrie ; l'effet dominant provient surtout des variations de  $\Gamma^{ph}(E_1 - E_0)$ .

#### 3.5.6 Thermalisation entre $p_y$ et $p_x$

Dans les expériences pompe-sonde, lorsque l'on excite un niveau de polarisation  $x$  ou  $y$  défini, la thermalisation entre les deux niveaux polarons de partie électronique  $p_x$  et  $p_y$  doit être considérée si le temps mis en jeu est plus court ou comparable à celui de la relaxation vers le fondamental.

On considère les états polarons suivants :

$$|\psi_{1,x}\rangle = \alpha_x |p_x, 0\rangle + \beta_x |s, 1_{sp_x}\rangle \quad (3.61)$$

$$|\psi_{1,y}\rangle = \alpha_y |p_y, 0\rangle + \beta_y |s, 1_{sp_y}\rangle \quad (3.62)$$

Le taux de relaxation de  $|\psi_y\rangle$  vers  $|\psi_x\rangle$  par émission de phonons acoustiques est donné à température nulle par  $\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})$ , avec  $\Delta_{pp}$  la séparation énergétique entre ces deux niveaux et la fonction  $\Gamma_{pp}(E)$  est définie par :

$$\begin{aligned} \Gamma_{pp}(E) &= 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |\langle \psi_{1,y} | H_d | \psi_{1,x} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - E_{sp}) \\ &= 2\pi |\alpha_x|^2 |\alpha_y|^2 \sum_{\mathbf{q}} |\langle p_y, 0 | H_d | p_x, 1_{\mathbf{q}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - E_{sp}) \\ &= |\alpha_x|^2 |\alpha_y|^2 \frac{D_c^2 \beta_p^4}{128 \pi c_s^2 \rho} q^7 \left[ \mathcal{D}(\alpha_p) \left( \frac{2}{\alpha_p} + \frac{2}{\alpha_p^3} + \frac{3}{2\alpha_p^5} \right) - \frac{1}{\alpha_p^2} - \frac{3}{2\alpha_p^4} \right] \exp\left(-\frac{q^2 \sigma_p^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (3.63)$$

### 3.5. Temps de vie dans la gamme térahertz

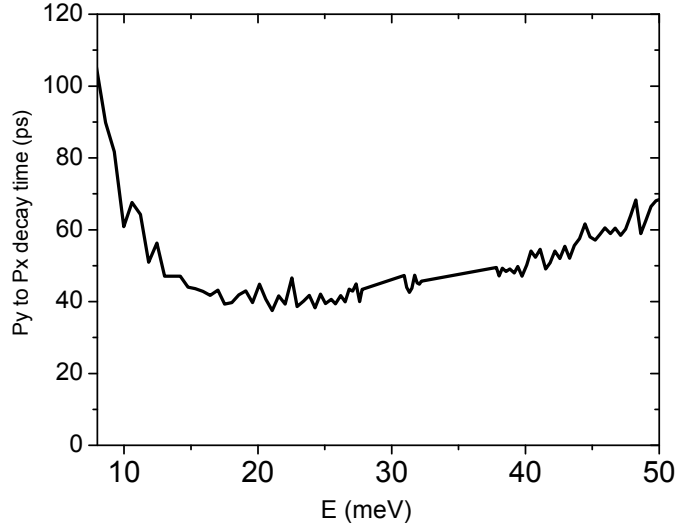


FIG. 3.12: Temps de relaxation  $\tau_{pp} = \hbar/\Gamma_{pp}$  entre les niveaux  $p_y$  et  $p_x$  à température nulle en fonction de l'énergie de transition électronique  $E_{sp}$ . La séparation anisotrope est prise telle que  $\Delta_{pp} = E_{sp}/10$ .

avec  $q = E/(\hbar c_s)$  et  $\alpha_p = q\sqrt{(\beta_p^2 - \sigma_p^2)/2}$ .

On remarque que les composantes phonons-LO des polarons n'interviennent pas dans ce calcul du fait de l'orthogonalité des deux modes phonons  $1_{sp_x}$  et  $1_{sp_y}$ .

La calcul de  $\tau_{pp} = \hbar/\Gamma_{pp}$  à température nulle est reportée sur la figure 3.12. Dans ce calcul, on suppose que  $\Delta_{pp} = E_{sp}/10$ , afin de rendre compte de l'observation expérimentale de la diminution de la séparation anisotrope lors du recuit des boîtes. De façon surprenante, le temps de relaxation  $\tau_{pp}$  est relativement constant sur une grande plage d'énergie. Ceci est dû au fait que la diminution de  $\Delta_{pp}$ , et donc la diminution du vecteur d'onde du phonon acoustique impliqué dans la relaxation, a lieu simultanément avec une augmentation des dimensions de la boîte (diminution de  $E_{sp}$ ).

A température non-nulle, le taux de relaxation de  $p_y$  à  $p_x$  par émission de phonons acoustiques est  $(1 + N(\Delta_{pp}))\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})$ , alors que celui d'absorption de  $p_x$  à  $p_y$  est  $N(\Delta_{pp})\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})$ .

Nous allons voir que ces transitions entre ces deux niveaux de polarisation différentes ont des conséquences sur les expériences pompe-sonde. En outre, dans le chapitre 5, nous étudierons les effets sur la cohérence de la transition  $s$ - $p_x$ .

## 3.6 Simulation d'expériences pompe-sonde

On décrit brièvement le principe d'une expérience pompe-sonde. Deux impulsions (pompe et sonde) sont obtenues par séparation d'un même faisceau provenant d'un laser à électron libre. Le faisceau sonde passe par une ligne de retard et est atténué fortement. L'impulsion pompe (à  $t = 0$ ) excite une partie des boîtes de l'état fondamental vers l'état excité. L'impulsion sonde arrive sur l'échantillon après un délai réglable  $\tau$  dans une direction différente de la pompe, et l'on mesure sa transmission. La mesure de cette transmission en fonction du délai  $\tau$  permet d'obtenir des informations sur la dynamique du système.

A la résonance polaron, les deux polarons sont séparés d'environ  $2V_{sp} = 8$  meV. Le temps correspondant  $\hbar/2V_{sp}$  est de 80 femtosecondes. Pour les expériences réalisés grâce à des lasers à électrons libres, la durée des impulsions est supérieur à la picoseconde. On pourra donc négliger les effets d'excitation cohérente des deux branches polaroniques.

### 3.6.1 Signal mesuré

On considère que les impulsions (pompe et sonde) ne sont résonnantes qu'avec la seule transition entre le niveau fondamental  $g$  et un niveau excité  $e$ , de populations respectives  $n_g$  et  $n_e$ .

Le signal de la sonde transmis est donné par :

$$I = I_0 e^{p\alpha_1(n_e - n_g)} \simeq I_0 [1 + p\alpha_1(n_e - n_g)] \quad (3.64)$$

où  $I_0$  serait l'intensité transmise en l'absence de boîtes,  $\alpha_1$  est le coefficient d'absorption d'une couche de boîtes quantiques et  $p$  le nombre de couches. Sur les échantillons étudiés, les mesures de transmission en excitation continue donnent un coefficient d'absorption de l'ordre de  $\alpha = 0.2$ , ce qui justifie le développement au premier ordre ( $\alpha \simeq p\alpha_1$ ).

Lors d'une expérience pompe-sonde, la variation de transmission normalisée de la sonde s'écrit :

$$\mathcal{T}(t) = \frac{I(t) - I_0}{I_m - I_0} \quad (3.65)$$

où  $I_m$  est l'intensité transmise maximale mesurée immédiatement après l'impulsion pompe à  $t = 0$ .

Si  $n_e^{eq}$  et  $n_g^{eq}$  sont les populations à l'équilibre des niveaux  $e$  et  $g$ , les populations après l'impulsion pompe seront de la forme  $n_e^{eq} + \delta$  et  $n_g^{eq} - \delta$ . On peut définir des populations normalisées  $N_g$  et  $N_e$  par

$$n_e(t) = n_e^{eq} + \delta N_e(t) \quad (3.66a)$$

$$n_g(t) = n_g^{eq} + \delta(N_g(t) - 1) \quad (3.66b)$$

### 3.6. Simulation d'expériences pompe-sonde

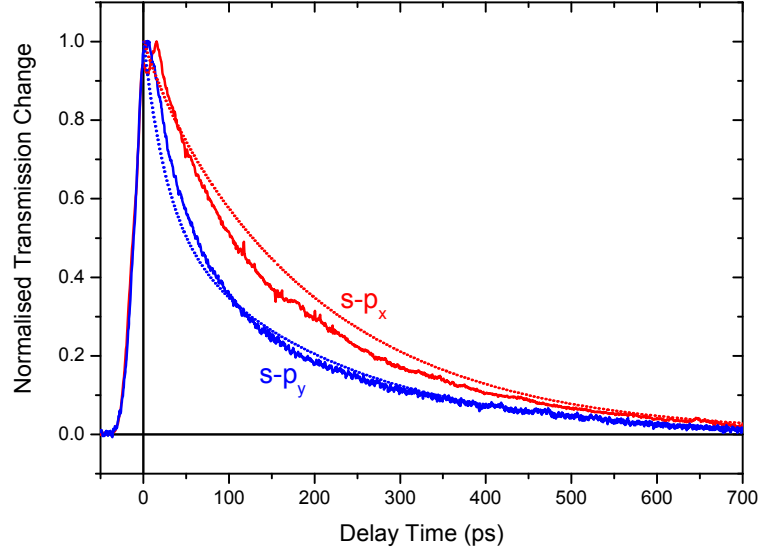


FIG. 3.13: Signal pompe sonde mesuré à l'énergie d'excitation de 18 meV pour les polarisations  $x$  et  $y$ . Les simulations correspondantes sont également montrées (voir texte pour les paramètres utilisés).

Avant excitation on a alors  $N_g = 1$  et  $N_e = 0$ , puis  $N_g = 0$  et  $N_e = 1$  juste après l'impulsion pompe. La variation de transmission normalisée s'écrit alors :

$$\mathcal{T}(t) = \frac{1 + N_e(t) - N_g(t)}{2} \quad (3.67)$$

#### 3.6.2 Signal pompe-sonde avec thermalisation entre $p_x$ et $p_y$

On considère maintenant les 3 niveaux  $s$ ,  $p_x$  et  $p_y$ . Les équations couplées sont :

$$\frac{dN_{p_x}}{dt} = -\Gamma_x N_{p_x} + \Gamma_{pp} ([N(\Delta_{pp}) + 1] N_{p_y} - N(\Delta_{pp}) N_{p_x}) \quad (3.68a)$$

$$\frac{dN_{p_y}}{dt} = -\Gamma_y N_{p_y} + \Gamma_{pp} (N(\Delta_{pp}) N_{p_x} - [N(\Delta_{pp}) + 1] N_{p_y}) \quad (3.68b)$$

$$\frac{dN_s}{dt} = \Gamma_x N_{p_x} + \Gamma_y N_{p_y} \quad (3.68c)$$

On considère une impulsion à  $t = 0$ , de largeur temporelle petite devant les temps de relaxation en jeu (mais suffisamment large pour éviter les effets d'excitations cohérentes). Cette hypothèse est assez bien vérifiée pour les impulsions picoseconde délivrée par les lasers à électrons libres. A  $t = 0$   $N_{p_x} = 1$  (0),  $N_{p_y} = 0$  (1) et  $N_s = 0$  pour une impulsion polarisée selon  $x$  ( $y$ ).

## Chapitre 3. Relaxation des polarons

---

La figure 3.13 montre le signal pompe-sonde mesuré pour une excitation de 18meV à une température de 10 K, ainsi qu'un ajustement réalisé en utilisant le modèle présenté ici pour les paramètres suivants :  $\hbar/\Gamma_x = \hbar/\Gamma_y = 200\text{ps}$ ,  $\tau_{pp} = \hbar/\Gamma_{pp} = 40\text{ps}$ , et  $\Delta_{pp} = 1.8\text{meV}$ . Ces temps de relaxation du polaron  $\hbar/\Gamma_{x/y}$  correspondent aux mesures déjà présentées précédemment (voir figure 3.10), alors que le temps de relaxation  $\tau_{pp}$  est a été calculé (voir figure 3.12) pour  $\Delta_{pp} = 1.8\text{meV}$ .

Sur la figure 3.13, on remarque que le signal pompe-sonde pour une polarisation selon  $y$  décroît plus vite que pour une polarisation selon  $x$ . Ceci est dû à la relaxation de  $p_y$  vers  $p_x$  par émission de phonons acoustiques. Ce phénomène avait déjà été mis en évidence sur les polarons à plus haute énergie dans la référence [12]. Ici, cependant, l'absorption de phonons acoustiques de  $p_x$  vers  $p_y$  n'est pas négligeable, même à  $T = 10\text{ K}$  étant donné que la la séparation anisotrope  $\Delta_{pp}$  est inférieur à 2 meV. Le signal pompe-sonde polarisé selon  $x$  a par conséquent un comportement légèrement bi-exponentiel<sup>4</sup>.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la relaxation des polarons. Pour cela, nous avons employé une description simple mais réaliste de l'anharmonicité, et nous avons pris en compte le fait que différents canaux de désintégration possibles dépendent de l'énergie des polarons. Ainsi, nous ne limitons pas seulement aux mécanismes de désintégration connus dans le massif. Cela nous conduit à une dépendance en énergie du temps de vie des polarons beaucoup plus forte que celle prédit par le modèle semi-classique. Dans la gamme terahertz, ce comportement est confirmé par des expériences sur des échantillons recuits : les temps de vie augmentent fortement lorsque l'énergie de la transition  $s$ - $p$  est abaissée, atteignant un temps de vie d'une nanoseconde pour des énergies de transition d'environ 15 meV. Pour des boîtes quantiques encore plus grandes, nous avons étudié la transition qui devrait avoir lieu entre les mécanismes d'émission de phonons acoustiques et celui d'anharmonicité du polaron.

---

<sup>4</sup>Les points expérimentaux de la figure 3.10 correspondent à un ajustement exponentiel aux temps longs du signal pompe-sonde.

## Chapitre 4

# Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié la relaxation des premiers états excités pour des boîtes quantiques chargées avec un seul électron. Nous étudions ici des boîtes chargées avec deux électrons. Les expériences pompe-sonde produisent alors des résultats tout à fait différents : on observe une relaxation de type bi-exponentielle. Il est alors nécessaire de prendre en compte le degré de liberté supplémentaire que constitue le spin. En prenant en compte les couplages spin-orbite, en plus des différents couplages aux phonons, nous calculons dans ce chapitre les temps nécessaires au retournement de spin. Ces calculs seront alors utilisés pour simuler les expériences pompe-sonde réalisées par le groupe de Sheffield.

Cette étude s'inscrit dans le contexte plus large d'étude du spin dans les boîtes quantiques, qui suscite de nombreux travaux actuellement en vue d'utilisation du spin comme base élémentaire (qubit) du calcul quantique. Dans la référence [62], le temps de vie du spin de l'électron dans l'état fondamental  $s$  d'une boîte quantique InAs/GaAs a été mesuré, pouvant aller jusqu'à 20 millisecondes lorsqu'un champ magnétique est appliqué. D'autres expériences [63] ont montré que cet état de spin de l'électron peut être « lu » et « écrit » en utilisant un pompage interbande polarisé circulairement. Dans ce cas, l'électron photo-excité additionné à l'électron initial peuvent former des états singulets ou triplets de spin. Le temps de vie des états triplets joue un rôle primordial dans l'efficacité de ce processus. Cependant, aucune étude précise de ce temps de vie des états triplets n'avait été faite jusqu'ici.

### 4.1 Résultats expérimentaux

Afin de contrôler la population des boîtes quantiques, des échantillons ayant une densité de boîtes  $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  sont dopés avec des atomes de silicium placés dans un plan situé à 2 nm en dessous de la couche de mouillage. Les concentrations de dopants sont de  $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  (échantillon A) et  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  (échantillons B et C).

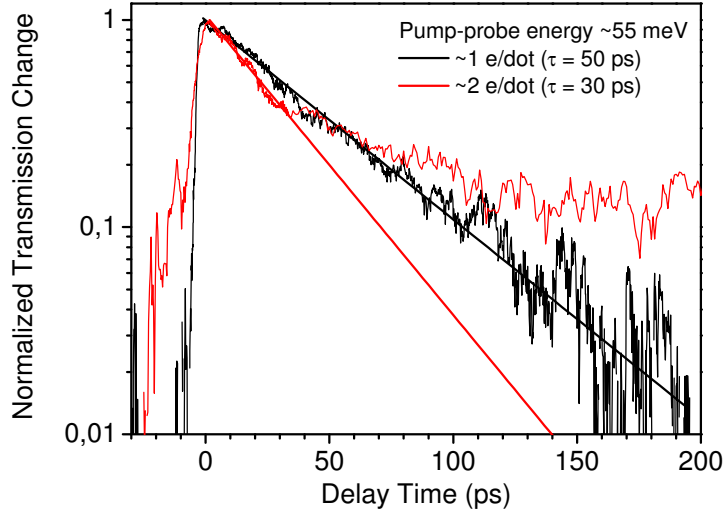


FIG. 4.1: Transmission normalisée de la sonde en fonction du temps de délai entre la pompe et la sonde pour les échantillons A (1 électron/boîte) et B (2 électrons/boîte) à 5 K et à une énergie de 55 meV. Des ajustements mono-exponentiels sont effectués afin d'extraire les constantes de temps.

On s'attend donc à avoir 1 électron par boîte en moyenne pour l'échantillon A et 2 pour les échantillons B et C. Des mesures de PLE apportent une confirmation du contrôle du dopage. Pour l'échantillon A, on observe un pic à environ 36 meV au-dessus de l'énergie de détection, attribué à la réplique phonon-LO du fondamental. Par contre, on n'observe pas de tel pic pour les échantillons B et C. En effet, pour une boîte dopée avec 2 électrons, le niveau  $s$  est déjà plein. On ne peut donc pas créer une paire électron-trou dans l'état fondamental excitonique ou sa réplique phonon-LO : les états excités optiquement font alors nécessairement intervenir des états  $p$ . D'autre part, des mesures intrabandes de magnéto-transmission ont été effectuées sur ces échantillons [58]. Une augmentation de la force de couplage de Fröhlich est observée entre les échantillons A et B, ce qui est prévu théoriquement (voir 4.3) lorsque l'on passe de 1 à 2 électrons par boîtes.

La dynamique de relaxation des polarons excités a été étudiée (par le groupe de Sheffield) grâce à une spectroscopie pompe-sonde dans l'infra-rouge lointain [64] ( $h\nu = 55$  meV). Les transitions électroniques de  $s$  à  $p$  ont un dipôle dans le plan et peuvent donc être observées avec une excitation lumineuse selon l'axe de croissance. Les lasers à électrons libres FELIX (Free Electron Laser for Infrared eXperiments, situé aux Pays-Bas) et FELBE (Free Electron Laser at the Electron Linear accelerator, situé à Dresde) ont été utilisés. Des impulsions picosecondes polarisées selon l'axe cristallographique  $[0\bar{1}1]$  peuvent être mises en résonance avec la transition de  $s$  à  $p_x$  [12, 65]. Le signal pompe-sonde pour les échantillons A et B à basse température, et à la même énergie d'excitation de 55 meV, est montré sur la figure 4.1. L'échantillon

## 4.2. Spectre énergétique d'une boîte doublement chargée

à 1 électron par boîte présente une décroissance exponentielle avec une constante de temps  $\tau_1 = 50 \pm 4$  ps, alors que celui à 2 électrons présente une décroissance à 2 temps : une décroissance initiale rapide avec une constante de temps de  $30 \pm 3$  ps, suivie d'une décroissance à l'échelle de la nanoseconde [65].

Afin d'expliquer cette relaxation bi-exponentielle pour les boîtes à 2 électrons, nous prenons en compte dans la suite trois principaux couplages :

- le couplage coulombien d'échange, qui lève la dégénérescence entre états singulets et triplets de spin ;
- l'interaction de Fröhlich pour ces états à 2 électrons, qui conduit à des états polarons de spin bien définis (singulets ou triplets) ;
- l'interaction spin-orbite de Dresselhaus, qui conduit à un mélange de ces états polarons singulets et triplets.

Nous verrons les différents types de relaxation permises par ces couplages. La relaxation de l'énergie se fera par émission de phonons acoustiques pour des séparations énergétiques de quelques meV, ou bien par le mécanisme d'instabilité anharmonique des polarons (que nous avons étudié au chapitre 3) pour des énergies en jeu plus grandes.

## 4.2 Spectre énergétique d'une boîte doublement chargée

Afin de calculer le spectre énergétique d'une boîte doublement chargée, nous calculons au préalable les états électroniques à une particule (voir chapitre 1). Nous considérons les trois premiers niveaux,  $s$ ,  $p_x$  et  $p_y$ . Comme exposé en 1.3.4, la composition et les dimensions de la boîte  $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$  sont choisies afin de rendre compte simultanément des énergies de transition interbande (1.12 eV, énergie mesurée du pic de PL) et intrabande (55 meV, énergie utilisée ici dans l'expérience pompe-sonde). La séparation énergétique anisotrope  $2V_A$  est prise égale à celle déterminée par les mesures d'absorption :  $2V_A = 6$  meV pour l'échantillon B et  $2V_A = 7.5$  meV pour l'échantillon C (voir encart fig. 4.5(a)). Nous calculons ensuite l'interaction coulombienne dans la base tronquée des états à deux particules sans interaction. Cette base comporte les 9 états obtenus par combinaison des 3 états à une particule considérée ( $ss$ ,  $sp_x$ ,  $sp_y$ ,  $p_xs$ ,  $p_xp_x$ ,  $p_xp_y$ ,  $p_ys$ ,  $p_yp_x$  et  $p_yp_y$ ). Nous prenons alors en compte l'interaction coulombienne dans cette base :

- La partie diagonale de l'interaction coulombienne, qui donne des corrections positives, de l'ordre d'une vingtaine de meV. En particulier, nous calculons des couplages diagonaux de 26.6 meV lorsque les deux électrons sont dans l'état  $s$ , et de 21.8 meV lorsque l'un est dans l'état  $s$  et l'autre dans l'état  $p_x$ .
- La partie hors-diagonale, qui comporte notamment les termes d'échange. Ceux-ci donnent lieu à une levée de dégénérescence entre états symétrisés et anti-symétrisés, qui sont respectivement singulets et triplets de spin lorsque l'on



## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

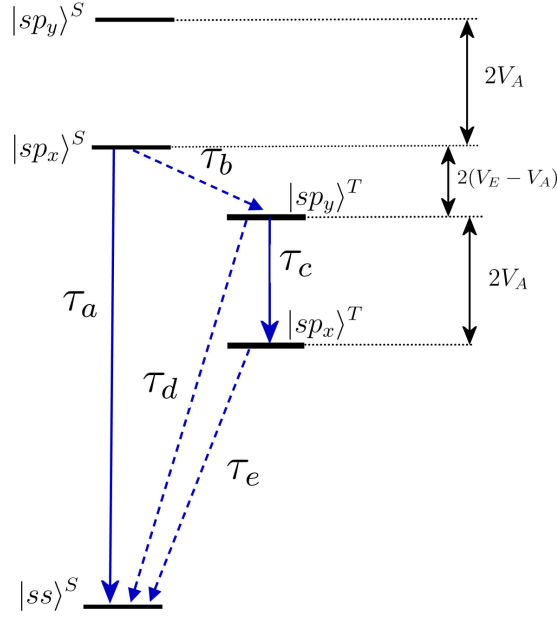


FIG. 4.2: Diagramme énergétique de boîtes quantiques chargées avec 2 électrons. Les états singulets et triplets sont désignés par les exposants S et T respectivement. Les flèches pleines représentent les processus de relaxation conservant le spin, celles tiretées désignant les processus de relaxation avec retournement du spin.

prend en compte le caractère fermionique des électrons. On note  $V_E$  l'énergie coulombienne d'échange entre  $s$  et  $p_{x/y}$  :

$$V_E = \left\langle s^{(1)} p_u^{(2)} \left| \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r |r^{(1)} - r^{(2)}|} \right| p_u^{(1)} s^{(2)} \right\rangle \quad (4.1)$$

où  $u = x$  ou  $y$  et les exposants 1 et 2 numérotent les deux électrons. On calcule  $2V_E \approx 10.5$  meV pour les échantillons B et C (cette énergie coulombienne peut être mesurée directement dans les expériences de photoluminescence sur boîte unique lorsque la boîte est doublement chargée [66]). Les états singulets et triplets de spin seront repérés respectivement par les exposants S et T. Ils s'écrivent :

$$|sp_u\rangle^S = \frac{1}{\sqrt{2}} (|s^{(1)} p_u^{(2)}\rangle + |p_u^{(1)} s^{(2)}\rangle) \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow^{(1)} \downarrow^{(2)}\rangle - |\downarrow^{(1)} \uparrow^{(2)}\rangle) \quad (4.2a)$$

$$|sp_u\rangle_{m_s}^T = \frac{1}{\sqrt{2}} (|s^{(1)} p_u^{(2)}\rangle - |p_u^{(1)} s^{(2)}\rangle) \otimes \begin{cases} |\uparrow^{(1)} \uparrow^{(2)}\rangle, & (m_s = +1) \\ (|\uparrow^{(1)} \downarrow^{(2)}\rangle + |\downarrow^{(1)} \uparrow^{(2)}\rangle) / \sqrt{2}, & (m_s = 0) \\ |\downarrow^{(1)} \downarrow^{(2)}\rangle, & (m_s = -1) \end{cases} \quad (4.2b)$$

Dans ces calculs, la constante diélectrique est  $\epsilon_r = 14.3$  (cela correspond à une interpolation linéaire entre GaAs et InAs).

### 4.3. Relaxation des polarons singulets

Un schéma des états de plus basse énergie est présenté sur la figure 4.2. Les premiers états excités sont répartis en 4 niveaux d'énergie : d'une part, la séparation anisotrope sépare les niveaux  $p_x$  et  $p_y$  ; d'autre part, l'interaction d'échange sépare chacune de ces polarisations entre singulet et triplet. Pour les boîtes étudiées ici,  $2V_A$  est plus petit que  $2V_E$ , par conséquent les deux triplets  $|sp_x\rangle^T$  et  $|sp_y\rangle^T$  ont des énergies plus basses que le premier état singulet excité  $|sp_x\rangle^S$ .

Par ailleurs, d'après les valeurs des énergies coulombiennes données ci-dessus, on remarque que l'énergie de transition à 2 électrons entre singulets  $|ss\rangle^S$  et  $|sp_u\rangle^S$  est environ égale à celle à 1 électron entre  $|s\rangle$  et  $|p_u\rangle$ . En effet,  $V_E$  étant environ égale à la différence entre les termes diagonaux, les deux effets (termes diagonaux et terme d'échange) ont tendance à se compenser. Par contre, la transition (interdite optiquement) vers les états triplets aura une énergie nettement plus basse.

Sur la figure 4.2, les lignes pleines indiquent les processus conservant le spin  $(\tau_a, \tau_c)$ , et les tiretées ceux de retournement de spin  $(\tau_b, \tau_d, \tau_e)$  qui peuvent intervenir après photo-excitation du singulet  $|sp_x\rangle^S$ . Ces différents processus de relaxation sont étudiés dans la suite.

### 4.3 Relaxation des polarons singulets

Dans la base des états à deux électrons, on calcule les couplages aux phonons LO. Le couplage de Fröhlich conservant le spin, on obtient des polarons singulets ou triplets, dont le spin est bien défini. Ce sont des superpositions d'états de type  $|(ab)^L, n\rangle$  avec  $a, b = s, p_x$  ou  $p_y$ ,  $L = S$  ou  $T$  et  $n$  est le nombre de modes de phonon-LO.

Pour les premiers états singulets excités, le couplage de Fröhlich dominant s'écrit :

$$\langle (ss)^S, 1 | H_F^{(1)} + H_F^{(2)} | (sp_x)^S, 0 \rangle = \sqrt{2} \langle s, 1 | H_F | p_x, 0 \rangle \quad (4.3)$$

Ainsi ce couplage est augmenté d'un facteur  $\sqrt{2}$  par rapport au cas du polaron à un électron. Cet effet a été mis en évidence sur l'échantillon B par des expériences de magnéto-transmission [58] : les anticroisements observés sont environ  $\sqrt{2}$  fois plus forts que pour des boîtes dopées avec 1 électron.

Comme la force de couplage de Fröhlich ( $\sim 7\text{meV}$ ) reste faible devant l'écart énergétique avec la résonance (19 meV), le diagramme de la figure 4.2 reste valide pour représenter les polarons dont la composante à 0 phonon est majoritaire. Par commodité, on désignera les états polarons par leur partie électronique dominante.

Etant donné l'augmentation de la force de couplage, le polaron singulet a un poids phonon-LO plus grand que dans le cas à un électron. Loin de la résonance, l'augmentation de la force de couplage d'un facteur  $\sqrt{2}$  entraîne une augmentation du poids phonon-LO d'un facteur 2. En conséquence, le temps de vie du polaron singulet ( $\tau_a$ ) est environ deux fois plus court que le polaron à un électron sondé avec

## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

des photons de même énergie. Plus précisément, si on applique la formule trouvée au chapitre 3 pour un couplage augmenté d'un facteur  $\sqrt{2}$ , on a :

$$\frac{1}{\tau_a} = \frac{2V_{sp}^2}{(E - E_{LO})^2 + 2V_{sp}^2} \frac{\Gamma^{ph}(E)}{\hbar} \quad (4.4)$$

où  $E$  est l'énergie du polaron à 2 électrons et correspond à l'énergie sondée expérimentalement de 55 meV. En comparant cette expression à celle du polaron à 1 électron, on en déduit une relation entre le temps de vie du polaron singulet  $\tau_a$  et celui du temps de vie du polaron à 1 électron ayant la même énergie :

$$\frac{\tau_a}{\tau_{1e-}} = \frac{1}{2} \times \frac{(E - E_{LO})^2 + 2V_{sp}^2}{(E - E_{LO})^2 + V_{sp}^2} \quad (4.5)$$

Numériquement, on trouve ici que  $\tau_a = \tau_{1e-}/1.9$ . Expérimentalement, sur la figure 4.1, les temps de décroissance sont de  $\tau_{1e-} \approx 50$  ps et  $\tau_a \approx 30$  ps aux temps courts, ce qui donne un rapport  $\tau_{1e-}/\tau_a \approx 1.7$  proche de la valeur attendue. En plus des incertitudes expérimentales, le léger désaccord peut s'expliquer par des fluctuations de l'occupation des boîtes dans l'échantillon [67].

### 4.4 Interaction spin-orbite

Afin de rendre compte d'éventuel retournement de spin entre les états singulets et triplets, on prend en compte l'interaction spin-orbite. On peut distinguer deux types d'interaction spin-orbite dans les semi-conducteurs :

- le terme de Dresselhaus [68], qui est intrinsèque aux cristaux n'ayant pas de symétrie d'inversion ;
- le terme de Rashba, qui provient de l'asymétrie du potentiel de confinement au niveau de l'hétérostructure.

Nous verrons que le terme de Dresselhaus est dominant pour le système considéré ici. Il s'écrit :

$$H_D = \gamma \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\kappa} \quad (4.6)$$

où  $\boldsymbol{\sigma}$  sont les matrices de Pauli,

$$\begin{aligned} \kappa_x &= k_x(k_y^2 - k_z^2) \\ \kappa_y &= k_y(k_z^2 - k_x^2) \\ \kappa_z &= k_z(k_x^2 - k_y^2) \end{aligned} \quad (4.7)$$

avec  $\mathbf{k} = -i\nabla$  l'opérateur impulsion de l'électron, et  $\gamma$  est la constante de Dresselhaus, qui dépend du matériau considéré :  $\gamma_{GaAs} = 7$  a.u. et  $\gamma_{InAs} = 26$  a.u. (unités atomiques) [69, 70].

Dans la suite, on considèrera initialement le couplage spin-orbite en jeu dans une boîte contenant 1 électron (4.4.1), puis aux conséquences en terme de relaxation du spin de cet électron lorsqu'un champ magnétique est appliqué (4.4.2), avant de nous intéresser au mélange singulet-triplet dans une boîte à 2 électrons (4.4.3). Les processus de relaxation avec retournement de spin dans une boîte à 2 électrons seront étudiés dans les sections 4.5 et 4.7.

### 4.4.1 Boîte à 1 électron

Dans le cas d'une boîte à un électron, les états  $s$  et  $p$  avec des orientations de spin opposées sont couplés par

$$\langle s \uparrow | H_D | p_x \downarrow \rangle = \langle s \downarrow | H_D | p_x \uparrow \rangle = -iV_D^{sp} \quad (4.8)$$

où l'élément de matrice  $V_D^{sp}$  est donné par :

$$\begin{aligned} V_D^{sp} &= \gamma \langle s | \kappa_x | p_x \rangle \\ &= \gamma (\langle s | k_x k_y^2 | p_x \rangle - \langle s | k_x k_z^2 | p_x \rangle) \\ &= \gamma \left( -\frac{\sigma_{sp}^2 \beta_{sp}^2}{\sigma_s \sigma_p \beta_s \beta_p^4} \left( 1 - \frac{\beta_{sp}^2}{2\beta_p^2} \right)^2 + \frac{\sigma_{sp}^2 \beta_{sp}^2}{\sigma_s \sigma_p^3 \beta_s \beta_p^2} \left( 1 - \frac{\beta_{sp}^2}{2\beta_p^2} \right) \left( 1 - \frac{\sigma_{sp}^2}{2\sigma_p^2} \right) \right) \end{aligned} \quad (4.9)$$

Pour  $\gamma = 22$  a.u. (cette valeur sera discutée dans la suite), on trouve  $|V_{sp}^D| = 3.9$  meV. Ce couplage est très sensible à l'extension des fonctions d'ondes, et donc très dépendant de l'énergie de confinement (déterminée par la composition). En particulier, on calcule des couplages spin-orbite plus élevés pour des boîtes ayant des énergies de PL plus faibles.

On a également calculé le terme de Rashba [71] entre ces deux états et trouvé qu'il était deux ordres de grandeur plus faible que  $V_{sp}^{D1}$ .

### 4.4.2 Retournement du spin entre sous-niveaux Zeeman

Cette section n'est pas directement liée au thème central de ce chapitre (boîtes à 2 électrons). Le but est ici d'illustrer, dans un cas plus simple (boîtes à 1 électron), le mécanisme de relaxation avec retournement du spin rendu possible par le couplage de Dresselhaus.

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué selon  $z$ , on a une levée de dégénérescence entre les états  $|\psi \uparrow\rangle$  et  $|\psi \downarrow\rangle$  par effet Zeeman. On s'intéresse au temps de relaxation entre ces deux états. Expérimentalement, des mesures de ce temps de vie du spin ont été effectuées dans la référence [62].

---

<sup>1</sup>Le terme de Rashba pourrait peut-être devenir aussi important que celui de Dresselhaus si un fort champ électrique était appliqué verticalement.

## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

L'effet Zeeman est de  $\pm g_e \mu_B B/2$  selon la projection du spin selon l'axe du champ magnétique (ici  $z$ ), avec  $g_e = 0.8$  d'après la référence [72]. L'écart énergétique entre  $|s, \downarrow\rangle$  et  $|p, \uparrow\rangle$  est donc augmenté de  $g_e \mu_B B$  alors que celui entre  $|s, \uparrow\rangle$  et  $|p, \downarrow\rangle$  est réduit de  $g_e \mu_B B$ . Les états propres mélangés de spin s'écrivent :

$$|\psi \uparrow\rangle \simeq |s, \uparrow\rangle + \beta_{x,1}|p_x, \downarrow\rangle + \beta_{y,1}|p_y, \downarrow\rangle \quad (4.10a)$$

$$|\psi \downarrow\rangle \simeq |s, \downarrow\rangle + \beta_{x,2}|p_x, \uparrow\rangle + \beta_{y,2}|p_y, \uparrow\rangle \quad (4.10b)$$

avec

$$\beta_{u,1} = (-i\delta_{u,x} + \delta_{u,y}) \left( \frac{V_D^{sp}}{E_{sp_u}(B) - g_e \mu_B B} \right) \quad (4.11a)$$

$$\beta_{u,2} = (-i\delta_{u,x} + \delta_{u,y}) \left( \frac{V_D^{sp}}{E_{sp_u}(B) + g_e \mu_B B} \right) \quad (4.11b)$$

où  $\delta_{u,x} = 1$  si  $u = x$  et 0 sinon, et  $E_{sp_u}(B)$  est l'énergie de transition électronique entre  $s$  et  $p_u$  qui tient compte de l'effet Zeeman orbital (la symétrie des états  $p_u$  n'est plus strictement  $x$  ou  $y$ ). La relaxation entre ces nouveaux états propres par émission de phonons acoustiques peut alors être exprimée :

$$\Gamma = 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |\langle \psi \uparrow | H_d + H_{\text{piezo}} | \psi \downarrow, \mathbf{q} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - g_e \mu_B B) \quad (4.12)$$

où  $H_d$  et  $H_{\text{piezo}}$  sont les hamiltoniens de déformation et piézoélectrique (voir 1.5). Ces perturbations étant diagonales en spin, on obtient :

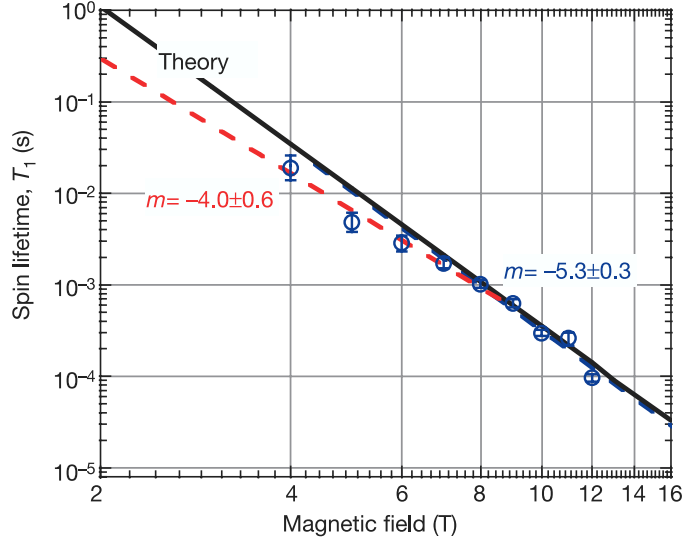
$$\begin{aligned} \langle \psi \uparrow | H_d + H_{\text{piezo}} | \psi \downarrow, \mathbf{q} \rangle &= \sum_{u=x,y} (\beta_{i,2} + \beta_{i,1}^*) \langle p | H_d + H_{\text{piezo}} | s, \mathbf{q} \rangle \\ &= \sum_{u=x,y} (-i\delta_{u,x} + \delta_{u,y}) \left[ \frac{V_D^{sp}}{E_{sp_u}(B) + g_e \mu_B B} - \frac{V_D^{sp}}{E_{sp_u}(B) - g_e \mu_B B} \right] \langle p | H_d + H_{\text{piezo}} | s, \mathbf{q} \rangle \\ &= \sum_{u=x,y} (-i\delta_{u,x} + \delta_{u,y}) \frac{2V_D^{sp} g_e \mu_B B}{E_{sp_u}^2(B)} \langle p | H_d + H_{\text{piezo}} | s, \mathbf{q} \rangle \end{aligned} \quad (4.13)$$

Le taux de relaxation du spin est donc :

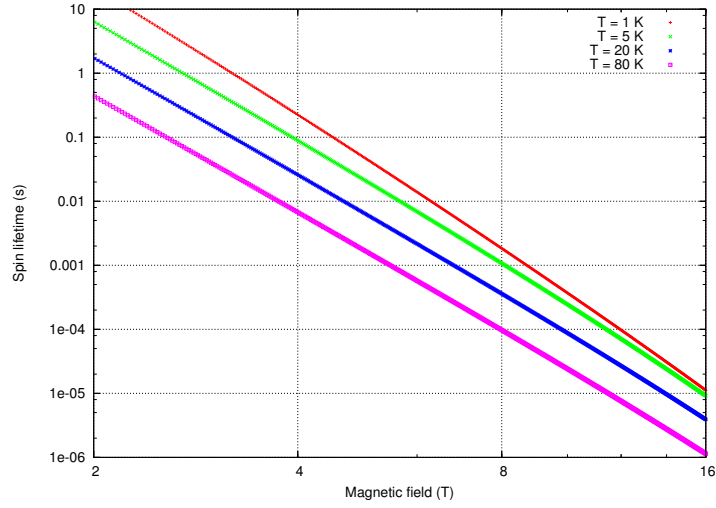
$$\Gamma = (V_D^{SP} g_e \mu_B B)^2 \left( \frac{1}{E_{sp_x}^4} + \frac{1}{E_{sp_y}^4} \right) \Gamma_{sp}(g_e \mu_B B) (1 + N(g_e \mu_B B)) \quad (4.14)$$

où  $\Gamma_{sp}(E)$  serait le taux de relaxation entre les états  $p$  et  $s$  à température nulle si leur séparation énergétique était  $E$  (énergie du phonon acoustique émis),

$$\Gamma_{sp}(E) = 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |\langle p, 0 | H_d + H_{\text{piezo}} | s, 1_{\mathbf{q}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - E) \quad (4.15)$$



(a) Temps de vie du spin mesuré dans la référence [62] (les symboles sont les mesures expérimentales, les lignes correspondent à des ajustements en loi de puissances)



(b) Temps de vie calculé pour différentes températures avec les mêmes paramètres de boîtes que ceux utilisés pour modéliser les boîtes à 2 électrons

FIG. 4.3: Temps de relaxation du spin mesuré (a) et calculé (b) entre les sous-niveaux Zeeman de l'état électronique fondamental  $s$  pour une boîte quantique chargée avec un électron en fonction du champ magnétique.

## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

La dépendance en énergie de ce terme est différente pour les deux types d'interactions aux phonons acoustiques en jeu : de la forme  $aE^5$  pour le potentiel de déformation (calculé en 3.5.5) et en  $bE^3$  pour le terme piezoélectrique.

Au final, la dépendance en champ magnétique du temps de retournement de spin est de la forme :

$$\Gamma \propto [a(g_e\mu_B B)^7 + b(g_e\mu_B B)^5] (1 + N(g_e\mu_B B)) \quad (4.16)$$

où  $N(E)$  est la fonction de Bose-Einstein. Le temps de vie du spin  $\hbar/\Gamma$  est tracé sur la figure 4.3 en fonction du champ magnétique. On obtient un accord qualitatif avec les données expérimentales de la référence [62], où les mesures ont été effectuées à  $T = 1K$ . On trouve que le terme piézoélectrique est dominant pour des champs magnétiques inférieurs à environ 10 T. A champ magnétique nul (ou très faible), les couplages hyperfins aux spins nucléaires ont pour effet de limiter le temps de vie du spin [73].

### 4.4.3 Boîte à 2 électrons

Pour une boîte à deux électrons, le terme de Dresselhaus couple les états singulets et triplets. Les couplages intervenant entre les états considérés sont les suivants :

- L'état singulet  $|sp_x\rangle^S$  est couplé aux deux états triplets  $|p_x p_y\rangle_{\pm 1}^T$  (ces états doublement excités n'apparaissent pas sur la figure 4.2) par :

$$\langle (sp_x)^S | H_D^{(1)} + H_D^{(2)} | (p_x p_y)_{\pm 1}^T \rangle = -\frac{V_{sp}^D}{\sqrt{2}} \quad (4.17)$$

Nous désignerons d'un tilde les états après diagonalisation. La fonction d'onde de l'état à majorité singulet s'écrit au premier ordre de perturbation :

$$\widetilde{|sp_x\rangle^S} \simeq |sp_x\rangle^S - \frac{V_{sp}^D}{\sqrt{2}E_{sp}} (|p_x p_y\rangle_{-1}^T + |p_x p_y\rangle_{+1}^T) \quad (4.18)$$

avec  $E_{sp}$  l'énergie moyenne de transition  $s$ - $p$  :  $E_{sp} = (E_{sp_x} + E_{sp_y})/2$ .

- L'état fondamental  $|ss\rangle^S$  est couplé aux deux états triplets  $|sp_{x/y}\rangle_{\pm 1}^T$  par :

$$\langle (ss)^S | H_D^{(1)} + H_D^{(2)} | (sp_{x/y})_{\pm 1}^T \rangle = -V_{sp}^D \quad (4.19)$$

Les états propres à majorité triplets sont alors :

$$\widetilde{|sp_{y/x}\rangle_{\pm 1}^T} \simeq |sp_{y/x}\rangle_{\pm 1}^T + \frac{V_{sp}^D}{E_{sp}} |ss\rangle^S \quad (4.20)$$

## 4.5 Relaxation de singulet à triplet

Grâce à ce mélange de spin, la relaxation induite par les phonons acoustiques est désormais possible entre les états décrits dans les équations 4.18 et 4.20. Le temps de relaxation  $\tau_b$  est donné par :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_b} &= \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{i=\pm 1} \sum_{\mathbf{q}} \left| \langle (\widetilde{sp_x})^S, n_{\mathbf{q}} | H_a | (\widetilde{sp_y})_i^T, (n+1)_{\mathbf{q}} \rangle \right|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - 2(V_e - V_a)) \\ &\simeq 2 \left( \sqrt{2} + \frac{1}{\sqrt{2}} \right)^2 \left( \frac{V_{sp}^D}{E_{sp}} \right)^2 \sum_{\mathbf{q}} |\langle p_x, n_{\mathbf{q}} | H_a | s, (n+1)_{\mathbf{q}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{\mathbf{q}} - 2(V_e - V_a)) \end{aligned} \quad (4.21)$$

avec  $H_a = H_a^{(1)} + H_a^{(2)}$  le potentiel de déformation pour les phonons acoustiques longitudinaux, et  $n_{\mathbf{q}}$  le facteur d'occupation de Bose pour les phonons-LA de vecteur d'onde  $\mathbf{q}$ . Le facteur 2 rend compte de la relaxation vers deux états des trois états triplets ayant pour projection de spin  $\pm 1$ . Sur la figure 4.4, ce mécanisme de retournement de spin est calculé à basse température en fonction de la séparation anisotrope  $2V_A$ .

Ce temps de retournement de spin comporte un minimum lorsque l'énergie à relaxer  $2(V_E - V_A)$  (la séparation entre  $|sp_x\rangle^S$  et  $|sp_y\rangle^T$ ) correspond à des longueurs d'ondes pour les phonons de l'ordre des dimensions de la boîte.

Pour les échantillons étudiés ici, les valeurs pour  $2(V_E - V_A)$  sont de l'ordre de quelques meV, ce qui conduit à des temps de retournement de spin de l'ordre de centaines de picosecondes.

Notons que ces énergies sont beaucoup trop grandes pour être relaxées via l'interaction hyperfine avec les spins des noyaux [73].

Le temps de relaxation entre  $|sp_x\rangle^S$  et le triplet de plus basse énergie  $|sp_x\rangle^T$  est donné par la même courbe. Cependant, la séparation énergétique est alors de  $2V_E = 10.5$  meV, ce qui donne un temps plusieurs ordres de grandeurs plus long que  $\tau_b$  (obtenu en extrapolant  $\tau_b(2V_A)$  à sa valeur en  $2V_A = 0$ ). On peut donc négliger ce canal, qui n'est d'ailleurs pas indiqué sur la figure 4.2.

## 4.6 Relaxation entre états triplets

Une fois dans l'état triplet de plus basse énergie  $|sp_y\rangle^T$ , on peut avoir relaxation par émission de phonons acoustiques vers le plus bas ensemble de triplets  $|sp_x\rangle^T$ . Le calcul de ce temps de relaxation ( $\tau_c$ ) en fonction de la séparation anisotrope est montré sur la figure 4.4. Ce calcul est le même que pour celui d'une boîte à un électron de  $p_y$  à  $p_x$  :  $1/\tau_c = \Gamma_{pp}(\Delta_{pp})/\hbar$  à basse température (voir 3.5.6). La dépendance en



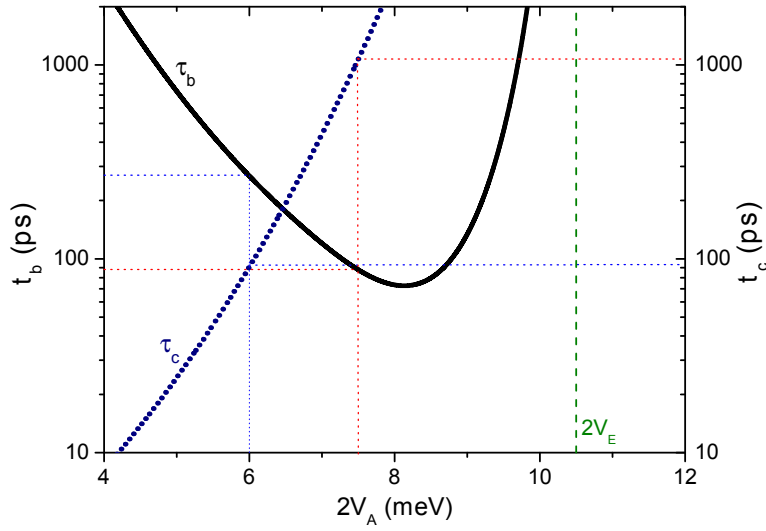


FIG. 4.4: Temps de retournement de spin entre singulet et triplet  $\tau_b$  (ligne pleine) et temps de relaxation entre triplets  $\tau_c$  (ligne pointillée) en fonction de la séparation anisotrope  $2V_A$  à  $T=0K$  et pour  $2V_E = 10.5$  meV. Les traits pointillés indiquent les valeurs correspondant aux séparations énergétiques mesurées sur les deux échantillons étudiés.

$\Delta_{pp}$  de ce temps de relaxation avait déjà été étudié dans la référence [12]. Ici nous trouvons des temps  $\tau_c$  de 95 ps et 1.1 ns pour respectivement  $2V_A = 6.0$  and  $7.5$  meV.

## 4.7 Temps de vie de l'état triplet

On étudie ici les chemins de relaxation  $d$  et  $e$  (voir figure 4.2), qui impliquent un retournement du spin. Le mécanisme de retournement de spin par émission de phonons acoustiques, étudié en 4.5, est ici totalement inefficace compte tenu de l'énergie en jeu. Comme nous allons le voir dans cette section, ces processus sont tout de même rendus possibles grâce à la fois aux couplages spin-orbite, aux couplages de Fröhlich et à l'anharmonicité du cristal.

Il faut tout d'abord souligner une différence importante par rapport au cas à 1 électron. Dans le chapitre 3, seul le couplage de Fröhlich non-diagonal (entre les couches  $s$  et  $p$ ) joue un rôle important pour déterminer le temps de vie anharmonique des polarons. Dans le cas présent à 2 électrons, l'interaction de Fröhlich ne peut pas coupler triplets et singulets directement. Par contre, le terme de Dresselhaus  $V_D$  couple singulet et triplet, mais à nombre de phonons identiques. Nous allons voir ici que la combinaison de ce couplage de Dresselhaus avec l'interaction de Fröhlich diagonale permet de coupler l'état triplet à la réplique à 1 phonon du niveau fondamental (singulet), et par conséquent entraîne une relaxation anharmonique.

Tout d'abord nous diagonalisons les interactions de Fröhlich entre les états à nombres de phonons-LO différents. Les états impliqués dans la suite sont : les po-

#### 4.7. Temps de vie de l'état triplet

l'arons triplets  $|(sp_{y/x})_{\pm 1}^T, \widetilde{0_{sp}}\rangle$ , l'état fondamental  $|ss, \widetilde{0_{ss}}\rangle$ , ainsi que ses répliques à 1 phonon  $|ss, \widetilde{1_{ss}}(q)\rangle$ . Les états de phonons utilisés sont définis dans la suite.

On utilise le formalisme de Huang-Rhys (voir 2.2.3) afin de décrire les états polarons singulets et triplets de plus basses énergies. A partir des opérateurs annihilation et création  $a(q)$  et  $a^\dagger(q)$  des phonons-LO de vecteur d'onde  $q$ , on définit les nouveaux opérateurs suivants :

$$b_{ss}(q) = a(q) + 2S_s(q) \quad (4.22a)$$

$$b_{sp_x}(q) = a(q) + S_s(q) + S_{p_x}(q) \quad (4.22b)$$

où  $S_s(q)$  et  $S_{p_x}(q)$  sont définis par :

$$S_s(q) = \frac{\langle s, 0_q | H_F | s, 1_q \rangle}{E_{LO}} \quad (4.23a)$$

$$S_{p_x}(q) = \frac{\langle p_x, 0_q | H_F | p_x, 1_q \rangle}{E_{LO}} \quad (4.23b)$$

Les modes fondamentaux associés aux opérateurs  $b_{ss}(q)$  et  $b_{sp_x}(q)$  sont respectivement  $|\widetilde{0_{ss}}\rangle$  et  $|\widetilde{0_{sp_x}}\rangle$ . Ainsi les états propres sont donnés par  $|ss, \widetilde{0_{ss}}\rangle$  pour l'état fondamental singulet et par  $|(sp_x)^T, \widetilde{0_{sp_x}}\rangle$  pour l'état triplet. La réplique à 1 phonon de l'état fondamental singulet s'écrit  $|ss, \widetilde{1_{ss}}(q)\rangle$ , avec  $|\widetilde{1_{ss}}(q)\rangle = b_{ss}^\dagger(q)|\widetilde{0_{ss}}\rangle$ .

D'après l'équation 4.19, l'interaction spin-orbite couple les états électroniques  $|sp\rangle_{\pm 1}^T$  et  $|ss\rangle^S$ . En prenant le couplage spin-orbite en perturbation dans la base polaron introduite ci-dessus, on obtient les états à dominante triplet et zéro-phonon suivants :

$$\begin{aligned} |\widetilde{sp_{y/x}}_{\pm 1}^T \rangle &\simeq |(sp_{y/x})_{\pm 1}^T, \widetilde{0_{sp}}\rangle + \frac{V_{sp}^D}{E_{d/e}} \langle \widetilde{0_{ss}} | \widetilde{0_{sp}} \rangle |ss, \widetilde{0_{ss}}\rangle \\ &+ \frac{V_{sp}^D}{E_{d/e} - E_{LO}} \sum_q \langle \widetilde{1_{ss}}(q) | \widetilde{0_{sp}} \rangle |ss, \widetilde{1_{ss}}(q)\rangle \end{aligned} \quad (4.24)$$

avec  $E_{d/e}$  l'énergie correspondante aux transitions  $d$  (pour  $\tau_d$ ) et  $e$  (pour  $\tau_e$ ) respectivement. La composante sur l'état fondamental à 1 phonon-LO rend possible la relaxation vers le fondamental, grâce aux mécanismes anharmoniques étudiés dans le chapitre 3. Le temps de vie de ces polarons s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_{d/e}} = \frac{1}{\tau_{LO}(E_{d/e})} \left| \frac{V_{sp}^D}{E_{d/e} - E_{LO}} \right|^2 \sum_q \left| \langle \widetilde{1_{ss}}(q) | \widetilde{0_{sp}} \rangle \right|^2 \quad (4.25)$$

avec  $\tau_{LO}(E_{d/e}) = \hbar/\Gamma^{ph}(E_{d/e})$  le temps de vie d'un phonon-LO qui aurait l'énergie  $E_{d/e}$  (comme défini dans le chapitre 3). Ce temps  $\tau_{LO}(E)$  est extrait à partir des

## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

données expérimentales sur les polarons à 1 électron [12], par la relation  $\tau_{LO}(E_{d/e}) = \tau_{1e-}/|\beta|^2$ , où  $\beta$  est la composante phonon-LO calculée au chapitre 3 et  $\tau_{1e-}$  est tiré de l'expérience.

Dans l'équation 4.24, le mélange entre l'état triplet et la réplique à 1 phonon de l'état fondamental singulet fait intervenir les recouvrements suivants :

$$\langle \widetilde{0_{sp}} | \widetilde{0_{ss}} \rangle = \exp \left( -\frac{1}{2} \sum_q |S_s(q) - S_p(q)|^2 \right) \quad (4.26)$$

$$\begin{aligned} \langle \widetilde{0_{sp}} | \widetilde{1_{ss}(q)} \rangle &= \langle \widetilde{0_{sp}} | b_{sp}^+(q) + S_s^*(q) - S_{p_x}^*(q) | \widetilde{0_{ss}} \rangle \\ &= [S_s^*(q) - S_{p_x}^*(q)] e^{-\frac{1}{2} \sum_q |S_s(q) - S_p(q)|^2} \end{aligned} \quad (4.27)$$

Afin de déterminer le temps de vie de l'état triplet (Eq. 4.25), nous calculons :

$$\sum_q |\langle \widetilde{0_{sp}} | \widetilde{1_{ss}(q)} \rangle|^2 = Y e^{-Y} \quad (4.28)$$

avec  $Y = \sum_q |S_s(q) - S_p(q)|^2$ .

Finalement, on calcule  $\tau_e = 4.9$  ns pour le temps de vie du triplet de plus basse énergie. Pour le triplet de plus grande énergie, on trouve  $\tau_d = 10$  ns et 12 ns pour respectivement  $2V_A = 6.0$  et  $7.5$  meV (le temps de vie dépend alors de l'anisotropie via l'énergie  $E_d$ ).

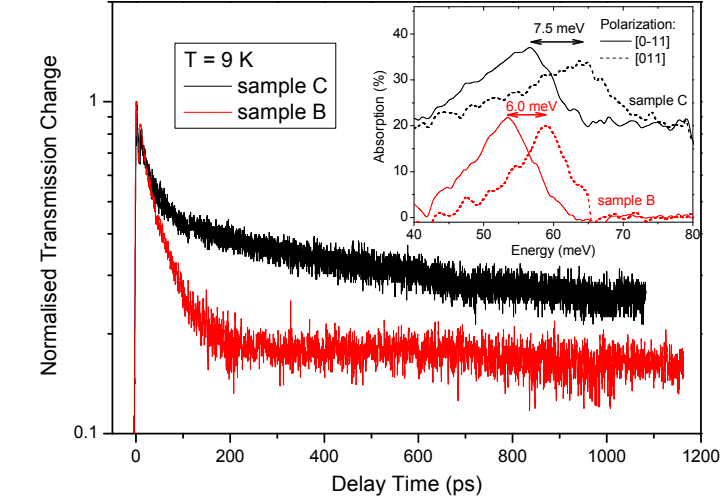
L'équation 4.24 fait intervenir l'efficacité des processus anharmoniques par l'intermédiaire de  $\tau_{LO}(E)$ . On s'attend donc à ce que la dépendance en énergie du temps de vie des états triplets soit similaire à celle du polaron à 1 électron, étudiée dans le chapitre 3, mais avec un couplage de Fröhlich  $V_{sp}$  remplacé par  $V_{sp}^D \sqrt{Y e^{-Y}}$ . En effet, la formule 4.25 est valable tant que  $V_{sp}^D \sqrt{Y e^{-Y}} \ll E_{d/e} - E_{LO}$ , de la même façon que pour un électron  $|\beta|^2 = V_{sp}^2 / (E - E_{LO})^2$  (voir chapitre 3) tant que  $V_{sp} \ll E - E_{LO}$ . La formule plus générale valable également à la résonance entre états triplets et phonon-LO s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_{d/e}} = \frac{1}{\tau_{LO}(E_{d/e})} \frac{|V_{sp}^D|^2 Y e^{-Y}}{(E_{d/e} - E_{LO})^2 + |V_{sp}^D|^2 Y e^{-Y}} \quad (4.29)$$

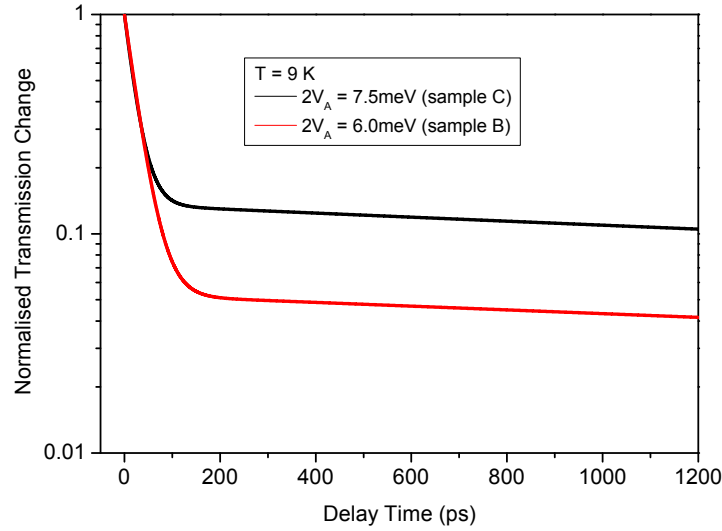
## 4.8 Expériences pompe-sonde : comparaison expériences-simulations

On compare ici les comportements aux temps longs et leurs dépendances en température pour les deux échantillons contenant 2 électrons par boîte (B and C). Le signal pompe-sonde, mesuré à  $T = 9$  K sur une échelle de temps d'une nanoseconde

#### 4.8. Expériences pompe-sonde : comparaison expériences-simulations



(a)



(b)

FIG. 4.5: (a) Signal pompe-sonde mesuré pour les échantillons de boîtes doublement chargée B (ligne rouge) et C (ligne noire). Encart : Spectre d'absorption sous incidence normale pour des polarisations selon  $[0\bar{1}1]$  (lignes pleines) et  $[011]$  (lignes pontillées) pour les échantillons B (lignes rouges) et C (ligne noire, décalée verticalement de 20% pour une meilleure clarté). (b) Signal pompe-sonde calculé pour des séparations anisotropes de 6.0 meV (ligne rouge) et 7.5 meV (ligne noire).

## Chapitre 4. Retournement du spin dans les boîtes à 2 électrons

---

sur la figure 4.1 en utilisant le laser à électron libres FELBE, est présenté sur la figure 4.5(a).

Sur les spectres d'absorption en continue (encart de la figure 4.5(a)), les deux échantillons à 2 électrons par boîtes étudiés possèdent des séparations anisotropes de  $2V_A \sim 6.0$  meV (échantillon B) et  $2V_A \sim 7.5$  meV (échantillon C).

Les deux échantillons donnent lieu à des signaux pompe-sonde à deux temps. L'échantillon C donne une composante longue de plus grande amplitude que l'échantillon B. Les temps de déclin de ces composantes longues sont d'environ  $\sim 2$  ns et  $\sim 5$  ns pour les échantillons C et B respectivement (la précision est limitée par le temps de délai maximum expérimental de 1.2 ns).

Nous avons simulé le signal pompe-sonde pour des boîtes possédant de telles anisotropies. Le calcul est présenté sur la figure 4.5(b). Il prend en compte les différents chemins de relaxation indiqués sur la figure 4.2. L'évolution temporelle est calculée numériquement à partir des équations d'évolution des populations correspondantes à ces différents chemins. La transmission normalisée est donnée par  $(1 + N_e - N_g)/2$ <sup>2</sup>, avec la population de l'état fondamental qui vérifie  $N_g = 0$  après l'impulsion du laser ( $t = 0$ ) alors que la population  $N_e$  de l'état photo-excité  $|sp_x^S\rangle$  est prise à 1. Dans cette simulation,  $\tau_a = 30$  ps a été extrait de l'ajustement de la figure 4.1, alors que  $\tau_b$ ,  $\tau_c$ ,  $\tau_d$  et  $\tau_e$  ont été calculés comme décrit plus haut, pour les deux valeurs expérimentales de  $2V_A$  : 6.0 meV et 7.5 meV (tous les autres paramètres étant les mêmes). Les calculs sont effectués avec  $\gamma = 22$  a. u., ce qui correspond au meilleur ajustement entre le temps de vie calculé et celui mesuré pour l'état triplet. Les calculs sont très sensibles à  $\gamma$ , étant donné que  $\tau_b$  et  $\tau_e$  sont proportionnels à  $1/\gamma^2$ . Cette valeur peut être comparée à une interpolation linéaire entre les valeurs des matériaux massifs GaAs et InAs en utilisant la fraction molaire de GaAs  $x = 0.4$  extraite de la modélisation des boîtes, ce qui donne  $\gamma = 18$  a. u.

On trouve un bon accord général entre l'expérience et la simulation du signal pompe-sonde. En particulier, on explique bien l'augmentation de la composante longue lorsque l'anisotropie augmente.

Le temps initial de décroissance est gouverné par  $\tau_a$ , alors que l'amplitude initiale (c'est à dire extrapolée à  $t = 0$ ) de la composante longue est donnée par le ratio  $\sim \tau_a/2\tau_b$ . Les calculs prédisent une diminution de  $\tau_b$  lorsque l'anisotropie augmente (fig.4.4) et par conséquent, étant donné que  $\tau_a$  est égal dans les deux échantillons, une augmentation de la composante longue. La différence entre simulation et expérience sur la valeur absolue de cette composante longue peut être due à la dépendance forte de  $\tau_b$  en fonction de  $2(V_E - V_A)$  (voir figure 4.4). En effet, dans notre modélisation, nous avons calculé les temps de relaxation correspondant à une boîte ayant des caractéristiques moyennes. Une modélisation plus fine serait obtenue en prenant en compte la distribution (que nous ne connaissons pas) des valeurs de  $2(V_E - V_A)$  dans l'échantillon, dues aux fluctuations des paramètres des boîtes.

Par ailleurs, la différence entre la mesure ( $\sim 2$  ns) et le calcul ( $\sim 5$  ns) du temps

---

<sup>2</sup>il y avait une erreur dans notre article [74]

#### 4.8. Expériences pompe-sonde : comparaison expériences-simulations

---

long pour l'échantillon C est probablement due à la forte dépendance en température, ce que nous discutons ci-dessous.

Sur la figure 4.6, les mesures et simulations sont comparées pour différentes températures. Les encarts de la figure 4.6 montrent la dépendance en température calculée pour les temps  $\tau_a$  et  $\tau_b$ . Le mécanisme de désintégration du polaron ( $\tau_a$ ) par anharmonicité de sa composante phonon-LO en 2 phonons-LA de même énergie ( $\sim 27\text{meV}$ ) est très peu sensible à la température en-dessous de 120K. Par conséquent, lorsque l'on augmente la température, le principal effet est de réduire les temps  $\tau_b$  et  $\tau_c$  ainsi que les temps de leurs processus inverses correspondants  $\tau_b^-$  et  $\tau_c^-$  par absorption de phonons acoustiques (non indiqué sur la figure 4.2). Par conséquent, le ratio  $\tau_a/\tau_b$  augmente, ce qui entraîne une augmentation de la composante longue. Cet effet est observé expérimentalement pour l'échantillon B (voir la figure 4.6(a)) où une augmentation de la température de 20 K à 80 K entraîne une augmentation de la composante longue.

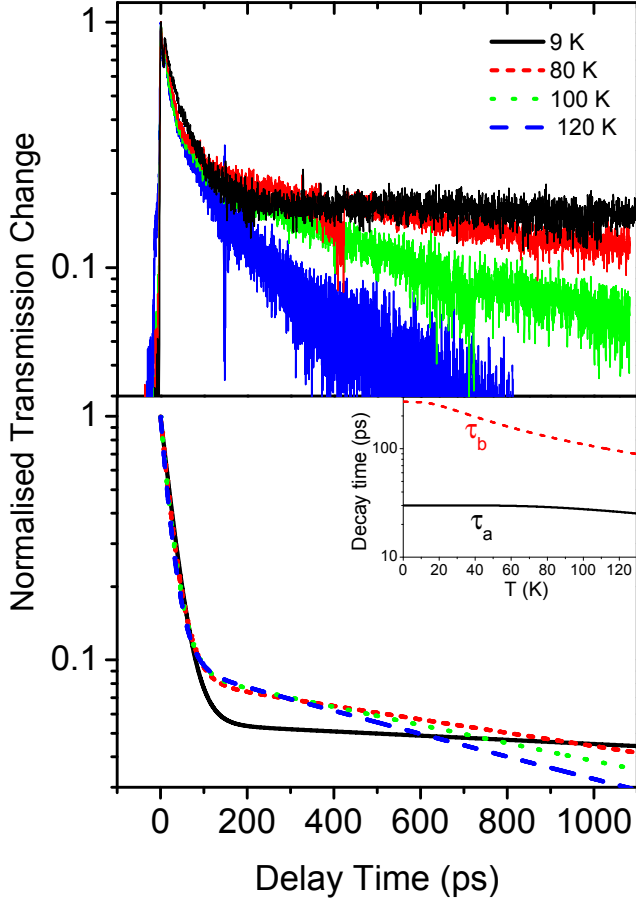
D'autre part, le temps long décroît avec la probabilité de processus d'absorption de phonons acoustiques (temps  $\tau_c^-$  et  $\tau_b^-$ ), ce qui permet la relaxation vers le niveau fondamental via l'état excité singulet.

La dynamique de relaxation du spin est relativement différente entre les deux échantillons.

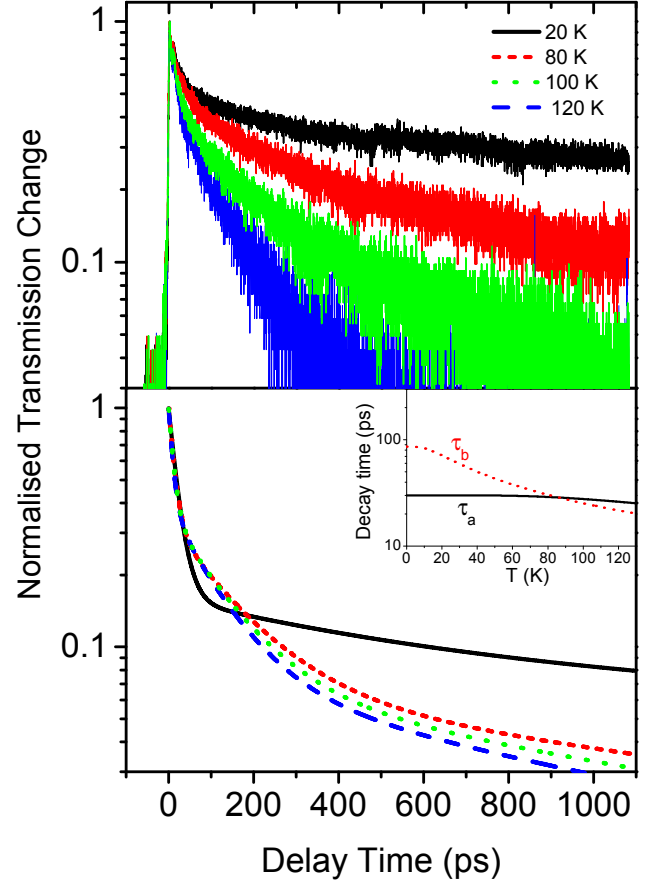
- Pour l'échantillon B, après un retournement de spin du singulet vers le triplet du haut, on a une relaxation rapide ( $\tau_c \sim 90\text{ps}$ ) vers le triplet de plus basse énergie. A basse température, le temps long observé est gouverné seulement par le temps de vie  $\tau_e$  de cet état triplet. Lorsque l'on augmente la température, les processus d'absorption de phonons  $\tau_c^-$  et  $\tau_b^-$  provoquent une décroissance du temps de vie de l'état triplet avec une énergie d'activation de  $2V_E$
- Pour l'échantillon C,  $\tau_c$  est considérablement plus long ( $\sim 1\text{ ns}$ ) à cause de la plus grande anisotropie. Pour des délais inférieurs à 500 ps, les états triplets occupés sont majoritairement ceux de plus haute énergie. L'absorption de phonons acoustiques pour retourner dans l'état singulet ( $\tau_b^-$ ) est facilement activée thermiquement puisque  $2(V_E - V_A)$  est de seulement 3 meV pour cet échantillon.

Sur la figure 4.6, ces différences de comportement avec la température sont observées expérimentalement. En particulier, la décroissance de la population pour l'état triplet dans l'échantillon C n'est pas exponentielle aux temps longs : on observe un ralentissement de la relaxation correspondant à la relaxation vers l'état triplet de plus basse énergie sur l'échelle de temps de la nanoseconde, en bon accord avec les simulations où  $\tau_c \simeq 1\text{ns}$ .

Au-dessus de 100K, on observe expérimentalement une relaxation plus rapide par rapport aux simulations. Ceci peut s'expliquer par une contribution éventuelle de niveaux de plus hautes énergies qui ne sont pas pris en compte dans le modèle.



(a) Echantillon B



(b) Echantillon C

FIG. 4.6: Dépendance en température des signaux pompe-sonde mesurés et simulés pour les échantillons (B) et (C). Encarts : Temps de relaxation  $\tau_a$  (ligne pleine noire) et  $\tau_b$  (ligne tiretée rouge) en fonction de la température.

## Conclusion

En conclusion, on a étudié la relaxation des électrons dans des boîtes contenant 2 électrons. Les polarons de spin singulet excités ont un temps de vie environ deux fois plus court que dans le cas à un électron. Le retournement de spin entre états singulets et triplets, est rendu possible grâce au couplage spin-orbite et est accompagné par l'émission de phonons acoustiques. Les états triplets relaxent à l'échelle de la nanoseconde, cette relaxation étant assistée par des mécanismes de type anharmonicité polaronique. Ces mécanismes sont très sensibles aux énergies en jeu : le temps de retournement singulet-triplet dépend de l'anisotropie des boîtes, alors que le temps de vie des états triplets a une dépendance en énergie semblable à celle des polarons à un électron.





# Chapitre 5

## Cohérence des transitions intrabandes

Le caractère discret des niveaux électroniques dans les boîtes quantiques conduit généralement à des temps de cohérence plus longs que dans les systèmes de plus grande dimensionnalité. En particulier, de longs temps de cohérence ont été mesurés pour la transition excitonique fondamentale [75, 76, 77, 78]. La spectroscopie de mélange à quatre ondes dégénéré est souvent utilisée pour déterminer les propriétés de cohérence. Son avantage réside dans le fait qu'elle permet de s'affranchir de l'élargissement inhomogène pour un ensemble de boîtes. Dans le cas de la transition interbande fondamentale, différentes études [79, 80, 81] ont montré que cette transition était composée d'une raie à zéro phonons (ZPL) étroite au milieu d'une raie large provenant des ailes de phonons acoustiques.

Concernant les transitions intrabandes, des études ont été réalisées sur des niveaux hauts en énergie dans la bande de valence et donnent un déphasage de l'ordre de 15 ps [82]. Cependant, aucune étude théorique n'a permis d'identifier précisément les mécanismes de déphasage pour ces transitions intrabandes.

Dans le cas des transitions intrabandes étudiées dans cette thèse, on peut se demander si la cohérence est limitée par la relaxation anharmonique des polarons étudiée au chapitre 3, ou si il y a des mécanismes supplémentaires de décohérence. S'il y en a, donnent-ils un élargissement lorentzien, c'est à dire une décroissance exponentielle ?

Dans ce chapitre nous nous intéressons aux propriétés de cohérence de la transition intrabande entre le fondamental ( $s$ ) et le premier niveau excité ( $p_x$ ) de la bande de conduction. Nous avons étudié la relaxation de la population entre ces niveaux dans le chapitre 3. L'objet de ce chapitre sera donc de déterminer les processus additionnels (dits de déphasage pur) qui affectent la cohérence de cette transition.

Après avoir présenté les expériences réalisées, nous étudierons successivement deux sources intrinsèques de déphasage des transitions intrabandes :

- La présence d'ailes de phonons acoustiques propres à cette transition intrabande. Nous verrons que ces ailes acoustiques induisent des oscillations amor-

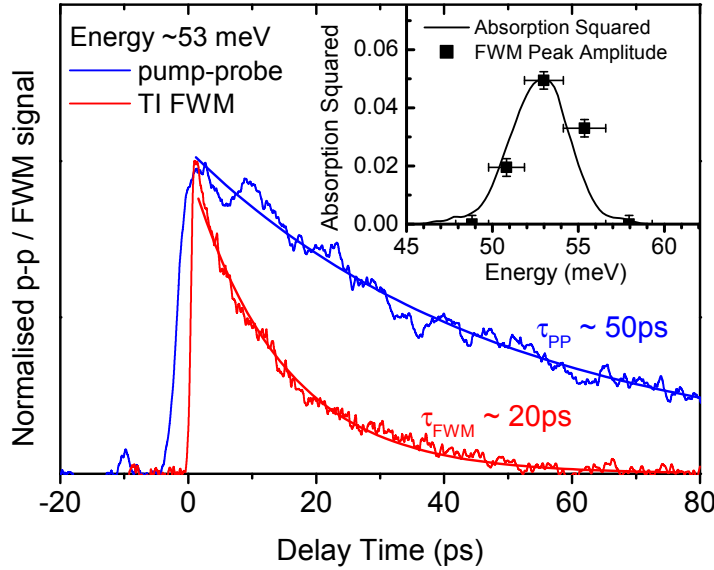


FIG. 5.1: Comparaison entre les signaux d'écho de photon (ligne tiretée) et pompe-sonde (ligne pleine) mesurés à 10 K et pour des énergies de transition de 53 meV en fonction du délai entre les deux impulsions incidentes. L'encart montre l'absorption au carré et l'intensité maximale du signal d'écho de photon en fonction de l'énergie de transition pour le même échantillon.

ties d'une partie de la cohérence. Néanmoins, il subsiste une partie de la cohérence correspondant à la raie à zéro phonons.

- Les transitions réelles et virtuelles vers le deuxième état excité ( $p_y$ ). Nous verrons que ces deux types de transitions conduisent à un élargissement lorentzien de la raie à zéro-phonon.

Finalement, nous simulerons l'expérience d'écho de photons que nous comparerons aux résultats expérimentaux obtenus par le groupe de Sheffield sur des échantillons dopés avec un électron par boîte.

## 5.1 Résultats expérimentaux et problématiques

### 5.1.1 Expérience de mélange à quatre ondes

L'échantillon étudié ici est similaire à ceux rencontrés dans les chapitres précédents. Le spectre d'absorption de l'échantillon étudié ici a été montré sur la figure 1.4 dans le chapitre 1. Il est dopé avec 1 électron par boîte. Il présente une séparation anisotrope entre les états  $p_x$  et  $p_y$  de  $\Delta_{pp} \approx 5$  meV.

Nous résumons ici les caractéristiques de la technique d'écho de photon, ou mélange à quatre ondes dégénéré. Deux impulsions sont envoyées sur l'échantillon de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_1$  et  $\mathbf{k}_2$ , séparées par un délai temporel  $\tau$ . Le ratio entre les deux

## 5.1. Résultats expérimentaux et problématiques

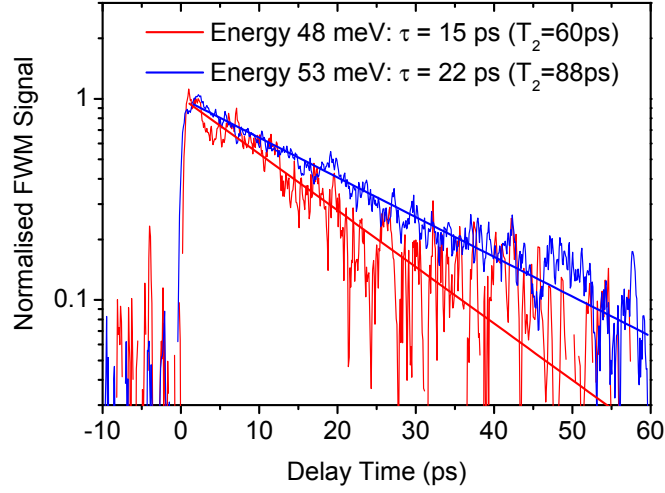


FIG. 5.2: Echo de photon pour des énergies d'excitation de 48 meV et 53 meV

impulsions est de 1 :2 (l'aire de la deuxième impulsion est le double de la première). L'intensité de l'écho de photon est mesurée dans la direction  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ . L'intensité incidente maximale est de  $\sim 50 \text{ W/mm}^2$ . Les mesures sont effectuées à faible intensité, dans le régime en  $\chi^{(3)}$ , ce qui signifie que l'intensité de l'écho de photon garde une dépendance cubique en fonction de l'intensité d'excitation (voir annexe B).

### 5.1.2 Cohérence à basse température

La comparaison entre les signaux de mélange à quatre ondes et pompe-sonde pour une énergie de 53 meV est effectuée sur la figure 5.1. Afin de vérifier que le signal mesuré correspond à l'écho de photon de la transition  $s$ - $p_x$ , la dépendance spectrale est mesurée. On trouve qu'elle suit bien un comportement proportionnel au carré de l'absorption linéaire de la transition  $s$ - $p_x$ .

A 10 K, le signal de l'écho de photon peut être ajusté grâce à une exponentielle de constante de temps  $\tau_{FWM} \approx 22 \text{ ps}$ . Or le temps de déphasage est de  $T_2 = 4\tau_{FWM}$  [83]. Par conséquent, le déphasage à basse température est d'environ  $T_2 \approx 88 \text{ ps}$ . Ceci correspond, aux incertitudes de mesure près, à  $2T_1 \approx 100 \text{ ps}$  obtenu indépendamment par la mesure pompe-sonde.

En comparant la largeur homogène  $\Gamma_2 = 2\hbar/T_2$  à celle créée uniquement par la relaxation de la population  $\Gamma_1 = \hbar/T_1$ , on définit un élargissement dit de déphasage par  $\Gamma_2^*$  par la relation :

$$\Gamma_2 = \Gamma_1 + \Gamma_2^* \quad (5.1)$$

avec  $\Gamma_2^* = 2\hbar/T_2^*$ . La relation correspondante entre les temps de déphasage total

## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

( $T_2$ ), de relaxation de la population ( $T_1$ ), et de déphasage pur ( $T_2^*$ ) s'écrit :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (5.2)$$

A basse température (10 K), on a environ  $T_2 \simeq 2T_1$ , ce qui indique que les mécanismes de déphasages purs sont négligeables ( $T_2^*$  est supérieur à plusieurs centaines de ps).

Les mesures ont été effectuées pour 2 énergies d'excitation. Le temps de déphasage diminue de 88 à 60 ps lorsque l'on abaisse l'énergie d'excitation de 53 à 48 meV. Cette tendance est en accord avec celle du temps de vie étudié au chapitre 3. En effet, pour une énergie de 48 meV, les temps de relaxation mesurés dans la référence [12] sont d'environ 40 ps.

### 5.1.3 Décohérence à température élevée : rôle des phonons acoustiques ?

Cependant, pour des températures supérieures à 20K, le temps de déphasage diminue beaucoup plus rapidement que le temps de vie, qui évolue comme  $\Gamma_1 = [1 + N(\hbar\omega_p/2)]^2 \hbar/T_1^0$ . Il faut donc prendre en compte des sources additionnelles de déphasages.

Dans les sections suivantes, nous prenons en compte l'interaction aux phonons acoustiques longitudinaux. Celle-ci peut s'écrire sous la forme :

$$V = \sum_{i,j} \sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{q}}^{ij} (a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^+) |i\rangle \langle j| \quad (5.3)$$

avec  $M_{\mathbf{q}}^{ij} = D_c \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho c_s V}} \langle i | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | j \rangle$ . Les états  $|i\rangle$  considérés sont les états  $|s\rangle$ ,  $|\psi_{1,x}\rangle$  et  $|\psi_{1,y}\rangle$ , où  $|\psi_{1,x}\rangle$  et  $|\psi_{1,y}\rangle$  sont les états polarons à dominante électronique  $p_x$  ou  $p_y$ <sup>1</sup> :

$$\begin{aligned} |\psi_{1,x}\rangle &= \alpha_x |p_x, 0\rangle + \beta_x |s, 1_{sp_x}\rangle \\ |\psi_{1,y}\rangle &= \alpha_y |p_y, 0\rangle + \beta_y |s, 1_{sp_y}\rangle \end{aligned} \quad (5.4)$$

Pour simplifier les notations,  $|i\rangle$  désigne ici l'état polaron avec la composante dominante sur l'état électronique  $i = s, p_x$  ou  $p_y$ . En effet, pour les transitions assistées par phonons acoustiques, la nature polaronique des états n'apportera que des termes correctifs par rapport au cas purement électronique (ceci est uniquement valable pour des polarons éloignés de la résonance).

Dans un premier temps, nous prendrons en compte la partie diagonale de cette interaction. Nous verrons qu'elle donne naissance à des ailes de phonons entourant

<sup>1</sup>On ne considère pas les états polarons à majorité phonon-LO, qui sont très éloignés énergétiquement aussi bien de  $|s\rangle$  que de  $|\psi_{1,x}\rangle$ , et par conséquent jouent un rôle négligeable dans les processus de décohérence discutés ici.

la raie principale à zéro-phonons, sans pour autant contribuer à l'élargissement de celle-ci. Puis nous prendrons en compte la partie non-diagonale de l'interaction aux phonons acoustiques entre les états  $p_x$  et  $p_y$ . Traitée à l'ordre le plus bas, elle est responsable de l'absorption de phonons de  $p_x$  vers  $p_y$  à température non-nulle. A l'ordre supérieur, cette interaction donne des transitions virtuelles qui contribuent à la perte de cohérence. Ces deux contributions (diagonales et non-diagonales) sont traitées séparément dans la suite (sections 5.2 et 5.3 respectivement).

## 5.2 Ailes de phonons acoustiques

Différentes méthodes existent afin d'étudier les conséquences du couplage Huang-Rhys sur la cohérence des transitions. Ce problème est également connu sous le nom de « modèle des bosons indépendants ». On prend en compte uniquement la partie diagonale de l'interaction aux phonons acoustiques. Comme on le verra pour les différents cas de figure (interbande ou intrabande), l'hamiltonien d'interaction électron-phonon du système à 2 niveaux ( $|g\rangle, |e\rangle$ ) peut se mettre sous la forme :

$$V = |e\rangle\langle e| \sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{q}}(a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^+) \quad (5.5)$$

Nous allons commencer ici par calculer directement la forme des ailes de phonons acoustiques ; nous en déduirons les propriétés de cohérence de la transition. Dans l'annexe A, nous exposons une méthode de calcul des ailes de phonons. Cette méthode est valable dans le cas d'un continuum de phonons, c'est à dire d'un cristal considéré comme infini du point de vue des modes de vibrations. La solution générale du problème [84] est souvent utilisée dans la littérature [79, 80]. L'expression présentée dans l'annexe A est cependant plus simple, car elle exploite le fait que les phonons forment un continuum (en particulier, on ne peut pas avoir absorption ou émission multiple d'un même mode de phonon).

Le résultat obtenu pour le spectre d'absorption de la transition  $g-e$  est le suivant :

$$A(E) = Ze^f(E) \quad (5.6)$$

où l'exponentielle de la fonction  $f$  est prise au sens du produit de convolution :

$$e^f = \delta(E) + f(E) + \frac{1}{2}[f \otimes f](E) + \dots + \frac{1}{p!}[f \otimes^{p-1} f](E) \quad (5.7)$$

La fonction  $f$  étant définie par :

$$f(\varepsilon) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{|M_{\mathbf{q}}|^2}{\varepsilon^2} [N(|\varepsilon|) + \Theta(\varepsilon)] \delta(|\varepsilon| - \hbar\omega_{\mathbf{q}}) \quad (5.8)$$

## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

où  $\Theta$  est la fonction de Heaviside.  $Z$  est le poids de la raie à zéro-phonon :

$$Z = \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) \quad (5.9)$$

Cette méthode n'est applicable que si la fonction  $f$  est sommable. Pour cela, il faut que le couplage  $\sum_{\mathbf{q}} |M_{\mathbf{q}}|^2 \delta(|E| - \hbar\omega_{\mathbf{q}})$  se comporte comme  $E^\alpha$  avec  $\alpha > 2$  au voisinage de 0 (ceci correspond au régime super-ohmique<sup>2</sup>).

Cette formule fait intervenir une somme des contributions des processus à nombre de phonons donné. La contribution des processus à 1 phonon est donné par la fonction  $Zf(E)$ . Les processus faisant intervenir plusieurs phonons sont exprimés par une convolution successive de  $f$ .

La transformée de Fourier de  $A(E)$  est :

$$g(t) = \exp \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) (e^{-iEt/\hbar} - 1) \right] = \exp [f(t) - f(0)] \quad (5.10)$$

où  $f(t)$  est la transformée de Fourier de  $f(E)$ . Ce résultat est obtenu par une autre méthode dans la référence [86], en considérant la relaxation de la polarisation.

Dans la suite, nous calculons les ailes de phonons associées à la transition intrabande  $s$ - $p$ . Nous reviendrons d'abord sur le calcul des ailes de phonons interbandes, qui ont déjà fait l'objet de nombreuses études [79, 80, 81]. Nous calculerons ensuite les ailes de phonons associées à la transition intrabande  $s$ - $p$ .

### 5.2.1 Ailes de phonons en interbande

Dans le cas d'une paire électron-trou (chacun étant dans son état fondamental), l'élément de matrice à considérer est :

$$M_{\mathbf{q}} = \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho c_s V}} (D_e \langle s_e | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_e} | s_e \rangle + D_h \langle s_h | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_h} | s_h \rangle) \quad (5.11)$$

Les contributions provenant des deux termes s'ajoutent étant donné que les potentiels de déformation sont de même signe pour les électrons et pour les trous.

Il est intéressant d'étudier le comportement de  $f$  au voisinage de 0 (c'est à dire pour  $q \ll 1/\sigma$ ,  $\sigma$  étant une dimension caractéristique de la boîte) :

$$f(E) = \frac{(N(|E|) + \Theta(E))E}{4\pi^2 \rho c_s (\hbar c_s)^3} (D_e + D_h)^2 \quad (5.12)$$

Si la température est nulle, cette fonction est nulle en 0. Par contre, pour une température finie  $T$ ,  $f$  prend la valeur suivante en 0 :

$$f(0) = \frac{kT}{4\pi^2 \rho c_s (\hbar c_s)^3} (D_e + D_h)^2 \quad (5.13)$$

---

<sup>2</sup>On se reportera à la référence [85] pour les notions de couplages ohmiques, super-ohmiques ou sub-ohmiques

## 5.2. Ailes de phonons acoustiques

Ainsi  $f$  prends une valeur non-nulle en 0 à température finie. Ce comportement est différent de celui que nous verrons pour le cas intrabande.

Le calcul complet de  $A(E)$  sans la contribution de la raie à zéro-phonon apparaît en pointillé sur la figure 5.3.

### 5.2.2 Ailes de phonons en intrabande

L'Hamiltonien permettant de rendre compte des ailes de phonons dans le cas d'une excitation entre l'état  $s$  et l'état  $|\psi_{1,x}\rangle$  est :

$$H = |s\rangle\langle s| \left[ E_s + \sum_{\mathbf{q}} \{ \hbar\omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{q}} + M_{\mathbf{q}}^{ss} (a_{\mathbf{q}}^+ + a_{\mathbf{q}}) \} \right] \\ + |\psi_{1,x}\rangle\langle\psi_{1,x}| \left[ E_{\psi_{1,x}} + \sum_{\mathbf{q}} \{ \hbar\omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{q}} + M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}} (a_{\mathbf{q}}^+ + a_{\mathbf{q}}) \} \right] \quad (5.14)$$

En appliquant le formalisme de Huang-Rhys à chacun de ces deux niveaux, on peut le réécrire sous la forme :

$$H = |s\rangle\langle s| \left[ \widetilde{E}_s + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}}^+ c_{\mathbf{q}} \right] + |\psi_{1,x}\rangle\langle\psi_{1,x}| \left[ \widetilde{E}_{\psi_{1,x}} + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{\mathbf{q}} d_{\mathbf{q}}^+ d_{\mathbf{q}} \right] \quad (5.15)$$

où l'on a défini les opérateurs suivants :

$$c_{\mathbf{q}} = a_{\mathbf{q}} + \frac{M_{\mathbf{q}}^{ss}}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}} \quad (5.16)$$

$$d_{\mathbf{q}} = a_{\mathbf{q}} + \frac{M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}}}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}} \quad (5.17)$$

et où les énergies corrigées s'écrivent :

$$\widetilde{E}_s = E_s - \sum_{\mathbf{q}} \frac{|M_{\mathbf{q}}^{ss}|^2}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}} \quad (5.18)$$

$$\widetilde{E}_{\psi_{1,x}} = E_{\psi_{1,x}} - \sum_{\mathbf{q}} \frac{|M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}}|^2}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}} \quad (5.19)$$

On a alors

$$d_{\mathbf{q}} = c_{\mathbf{q}} + S_{\mathbf{q}} \quad (5.20)$$

avec

$$S_{\mathbf{q}} = \frac{M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}} - M_{\mathbf{q}}^{ss}}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}} \quad (5.21)$$



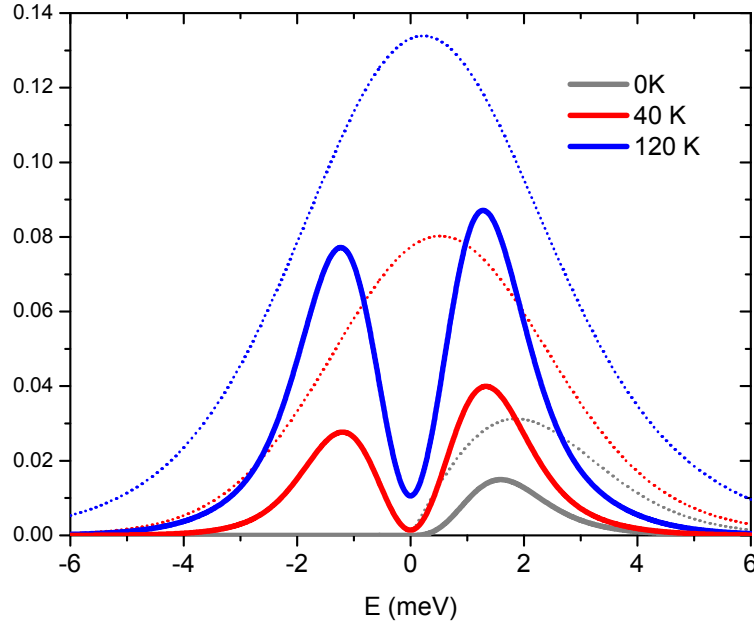


FIG. 5.3: Comparaison entre les absorptions normalisées due aux ailes de phonons des transitions intrabandes et interbandes pour différentes températures, sans la raie à zéro-phonons. L'énergie de transition de la raie à zéro-phonons est prise comme origine. Le calcul des ailes de phonons intrabandes est montré en lignes pleines, alors que celui des ailes interbandes est en lignes pointillées.

Si l'on note  $|n\rangle$  les états propres de  $c_{\mathbf{q}}^{\dagger}c_{\mathbf{q}}$  et  $|\widetilde{n}\rangle$  ceux de  $d_{\mathbf{q}}^{\dagger}d_{\mathbf{q}}$ , alors les recouvrements entre ces deux bases sont données par les mêmes formules que dans l'annexe A, pourvu que l'on remplace  $M_{\mathbf{q}}$  par  $M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}} - M_{\mathbf{q}}^{ss}$ .

Il faut alors calculer

$$\begin{aligned}
 M_{\mathbf{q}}^{\psi_{1,x}\psi_{1,x}} - M_{\mathbf{q}}^{ss} &= |\alpha_x|^2 M_{\mathbf{q}}^{p_x p_x} + |\beta_x|^2 M_{\mathbf{q}}^{ss} - M_{\mathbf{q}}^{ss} \\
 &= |\alpha_x|^2 (M_{\mathbf{q}}^{p_x p_x} - M_{\mathbf{q}}^{ss}) \\
 &= |\alpha_x|^2 \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho}} D_e (\langle p_x | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_e} | p_x \rangle - \langle s | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_e} | s \rangle )
 \end{aligned} \tag{5.22}$$

La différence apparaissant dans cette dernière parenthèse s'annule à vecteur d'onde nulle ( $q = 0$ ) ; le premier terme non nul du développement est en  $q^2$ . Comme ce terme intervient au carré dans  $f$ ,  $f$  va se comporter comme  $E^4$  au voisinage de 0 à température finie.

La figure 5.3 montre le calcul des ailes de phonons sans la raie à zéro-phonons pour les transitions intrabandes et interbandes fondamentales (l'énergie de transition de la raie à zéro-phonons est prise comme origine). Dans les deux cas, à température nulle, il n'existe qu'un seul pic d'ailes de phonons correspondant à l'émission de phonons. L'énergie correspondante est positive car on s'intéresse à l'absorption en

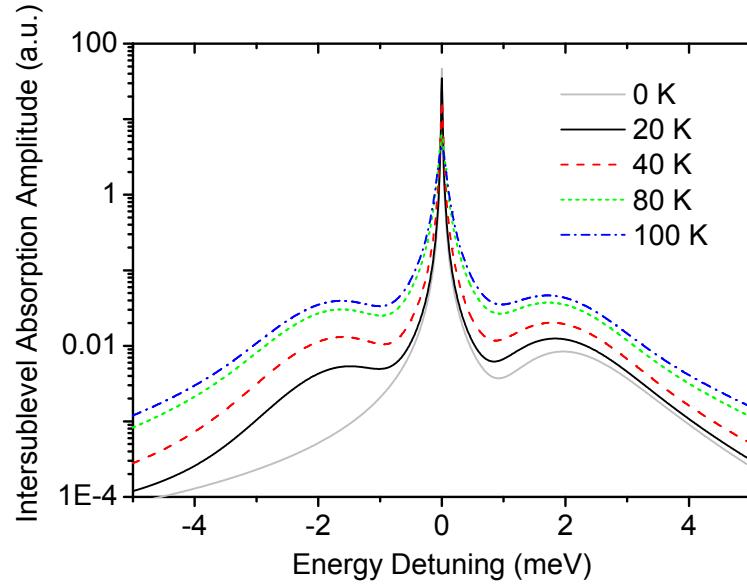


FIG. 5.4: Absorption intrabande normalisée d'une boîte unique calculée pour différentes températures (en échelle logarithmique). L'énergie de transition de la raie à zéro-phonons est prise comme origine.

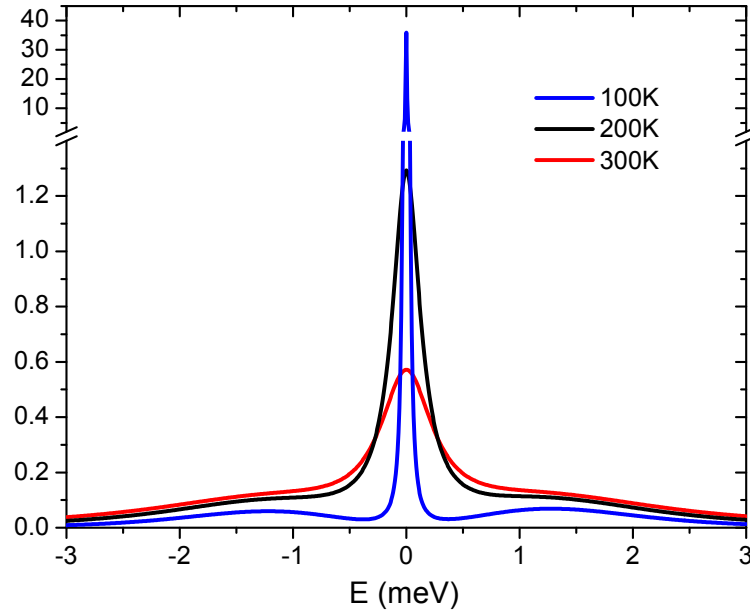


FIG. 5.5: Absorption intrabande normalisée d'une boîte unique calculée pour des températures de 100K, 200K et 300K. L'énergie de transition de la raie à zéro-phonons est prise comme origine.

fonction de l'énergie d'excitation : si l'énergie du photon incident est supérieur à l'énergie de la raie à zéro-phonons, alors l'absorption du photon peut avoir lieu si elle est accompagnée d'émission d'un ou plusieurs phonons, permettant la conservation de l'énergie.

A température non-nulle, on remarque une nette différence de comportement : pour la transition excitonique, les ailes de phonons forment un seul pic, centré à une énergie légèrement supérieure à celle de la raie à zéro-phonons. Pour les ailes de la transition intrabande, il y a 2 pics distincts de part et d'autre de la raie à zéro-phonons.

Le calcul de l'absorption  $A(\varepsilon)$ , convolué avec une lorentzienne de largeur  $\Gamma_2$  qui sera calculée dans la suite, est montré sur la figure 5.4 pour différentes températures. La forme des ailes de phonons est caractéristique de la nature intrabande de la transition. En effet, nous avons vu que  $f(\varepsilon)$  se comportait comme  $\varepsilon^4$  autour de  $\varepsilon = 0$ . Or la fonction  $f$  représente les processus à 1 phonon, qui sont ici largement dominants pour déterminer la forme des ailes de phonons.  $f$  est piquée aux alentours de 1.5 meV, ce qui correspond à des phonons ayant une longueur d'onde de l'ordre de la taille de la boîte. Ainsi les ailes de phonons intrabandes sont constitués de 2 pics séparés de la raie à zéro-phonons. Les termes d'ordres supérieurs (processus à plusieurs phonons, associés aux convolutions dans le développement 5.7) apportent une légère correction. En particulier, sur la figure 5.3, contrairement à  $f$ , les ailes de phonons ne s'annulent pas complètement en  $\varepsilon = 0$ . Ceci est dû aux processus multi-phonons dont le bilan énergétique absorption/émission est nul.

Une interprétation plus qualitative peut être menée en raisonnant sur la déformation du cristal provoquée par le potentiel de déformation. La création d'une paire électron-trou (transition interbande) crée une dilation du cristal dans la boîte quantique. A température non nulle, cette dilatation de la boîte quantique peut être associée à l'absorption ou l'émission de phonons de grande longueur d'onde. Par contre, dans la cas d'une transition intrabande, le volume du cristal au niveau de la boîte quantique est conservée, il n'y a donc pas de déformation à longue portée pouvant conduire à l'émission ou l'absorption de phonons de grande longueur d'onde.

La figure 5.5 montre qu'à température ambiante la raie centrale devient très élargie, formant avec les ailes de phonons un fonds d'absorption continu. On discutera dans la section suivante les processus d'élargissement de cette raie centrale.

### 5.3 Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

Étant donné que la raie à zéro-phonons est donnée par une fonction dirac dans l'équation 5.8, la partie diagonale de l'interaction aux phonons acoustiques ne contribue pas à la largeur  $\Gamma_2$ . Par contre, la partie hors-diagonale peut jouer un rôle non-négligeable. Étant donné la grande séparation énergétique entre  $s$  et  $p_x$

### 5.3. Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

( $\Delta_{sp} \simeq 50$  meV), nous négligerons ici le couplage des phonons acoustiques à cette transition. Par contre, on s'attend à ce que les couplages des phonons acoustiques à la transition  $p_x$ - $p_y$  ( $\Delta_{pp} \simeq 5$  meV) jouent un rôle important. Dans cette section, on étudie le rôle joué par ces couplages dans la décohérence de la transition intrabande  $s$ - $p_x$ . Pour simplifier les notations, on confondra les états polarons  $\psi_{1,x}$  et  $\psi_{1,y}$  avec leur composante majoritaire électronique  $p_x$  et  $p_x$  dans cette section.

#### 5.3.1 Généralités sur la décohérence

On cherche ici à établir le lien entre la décohérence de la transition  $s$ - $p_x$  et les couplages aux phonons acoustiques entre les états  $p_x$  et  $p_y$ . Pour cela, on va calculer l'évolution temporelle du dipôle associé à la transition  $s$ - $p_x$  après une excitation initiale.

Comme l'état fondamental  $s$  est très éloigné énergétiquement des autres niveaux, on suppose qu'il n'est pas affecté par les couplages aux phonons acoustiques. Avec cette hypothèse, l'hamiltonien considéré est :

$$H = H_0 + V \quad (5.23a)$$

$$H_0 = E_s |s\rangle \langle s| + E_{p_x} |p_x\rangle \langle p_x| + E_{p_y} |p_y\rangle \langle p_y| + \sum_{\mathbf{q}} \hbar \omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{q}} \quad (5.23b)$$

$$V = \sum_{\mathbf{q}} (a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^+) (M_{\mathbf{q}}^{p_x p_y} |p_x\rangle \langle p_y| + M_{\mathbf{q}}^{p_y p_x} |p_y\rangle \langle p_x|) \quad (5.23c)$$

L'opérateur dipolaire de la transition  $s$ - $p_x$  est  $d = |s\rangle \langle p_x| + |p_x\rangle \langle s|$ . Supposons que le système soit initialement dans l'état  $|\psi(0^-)\rangle = |s, \phi_0\rangle$ , où  $|\phi_0\rangle$  décrit l'état de phonon initial :  $|\phi_0\rangle = |n_1, n_2, \dots, n_N\rangle$  avec  $n_i$  l'occupation du mode de phonon  $i$  et  $N$  est le nombre de cellules unitaires ( $N \rightarrow +\infty$ ). Les  $n_i$  seront pris plus loin de façon à satisfaire la statistique de Bose à température  $T$  et à l'énergie  $\varepsilon_i$ .

Une impulsion Dirac est envoyée à  $t = 0$ . L'opérateur évolution correspondant s'écrit  $U_d = e^{-i\Theta d}$  avec  $\Theta$  l'aire de l'impulsion. Au temps  $t$  après l'impulsion, l'état s'écrit  $|\psi(t)\rangle = e^{-iHt/\hbar} U_d |s, \phi_0\rangle$ . La valeur moyenne du dipôle ainsi créé après un délai  $t$  est :

$$\begin{aligned} P(t) &= \langle \psi(t) | d | \psi(t) \rangle = \langle s, \phi_0 | U_d^+ e^{iHt/\hbar} d e^{-iHt/\hbar} U_d | s, \phi_0 \rangle \\ &= \frac{-i}{2} \sin(2\Theta) \langle s, \phi_0 | e^{iHt/\hbar} d e^{-iHt/\hbar} d | s, \phi_0 \rangle + cc \end{aligned} \quad (5.24)$$

Afin d'alléger les expressions dans la suite, on prends l'origine des énergies est prise au niveau de  $|p_x, \phi_0\rangle$ . Étant donné que l'évolution dans l'état fondamental est libre, on obtient :

$$P(t) = \frac{-i}{2} \sin(2\Theta) e^{-iE_{sp_x} t/\hbar} \langle p_x, \phi_0 | e^{-iHt/\hbar} | p_x, \phi_0 \rangle + cc \quad (5.25)$$

## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

La valeur moyenne du dipôle est donc proportionnelle à la probabilité de rester dans l'état  $|p_x, \phi_0\rangle$  en fonction du temps. En l'absence de couplage aux phonons acoustiques  $V$ , cette amplitude est donnée par l'évolution libre  $\cos(Esp_xt/\hbar)$ . Dans la suite, on calcule cette amplitude en prenant en compte l'interaction électron-phonon  $V$  dans l'hamiltonien 5.23.

### 5.3.2 Calcul de la décohérence

Pour  $t > 0$ , l'opérateur évolution s'écrit :

$$e^{-iHt/\hbar} = -\frac{1}{2i\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dE e^{-iE\tau/\hbar} G^+(E) \quad (5.26)$$

avec  $G^+(E) = G(E + i0^+)$  est la fonction de Green retardée et  $G(z) = 1/(z - H)$  est l'opérateur résolvante.

Afin d'évaluer ce terme, on utilise la méthode des opérateurs de projection dans le cadre du formalisme de la résolvante [37, 87].  $P$  est défini comme l'opérateur projection sur l'état  $|p_x, \phi_0\rangle$ , alors que  $Q = 1 - P$ .

La projection de l'opérateur résolvante s'écrit [37, 87] :

$$PG(z)P = \frac{P}{z - PH_0P - PR(z)P} \quad (5.27)$$

où l'opérateur déplacement  $R$  est donné par :

$$R(z) = V + V \frac{Q}{z - QH_0Q - QVQ} V \quad (5.28)$$

La partie réelle de l'élément de matrice  $PRP$  nous donnera le déplacement en énergie (que l'on négligera ici), alors que la partie imaginaire correspond au temps de vie de l'état quantique  $|\psi_0\rangle = |p_x, \phi_0\rangle$ .

**Processus uniquement à 1 phonon** Si nous ne considérons que les processus à 1 phonon, le terme  $QVQ$  est négligé dans le dénominateur de l'équation 5.28 :

$$\langle p_x, \phi_0 | R(E + i0^+) | p_x, \phi_0 \rangle = -iN(\Delta_{pp}) \frac{\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})}{2} \quad (5.29)$$

$$\Gamma_{pp}(\varepsilon) = 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |M_{\mathbf{q}}^{\psi_x \psi_y}|^2 \delta(\varepsilon - \varepsilon_{\mathbf{q}}) \quad (5.30)$$

avec  $N(\varepsilon) = 1/(e^{\varepsilon/k_B T} - 1)$  la facteur d'occupation de Bose (le calcul de  $\Gamma_{pp}$  a déjà été explicité dans l'équation 3.63).

Il s'ensuit que la polarisation décroît comme

$$\exp(-N(\Delta_{pp})\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})t/2\hbar) \quad (5.31)$$

### 5.3. Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

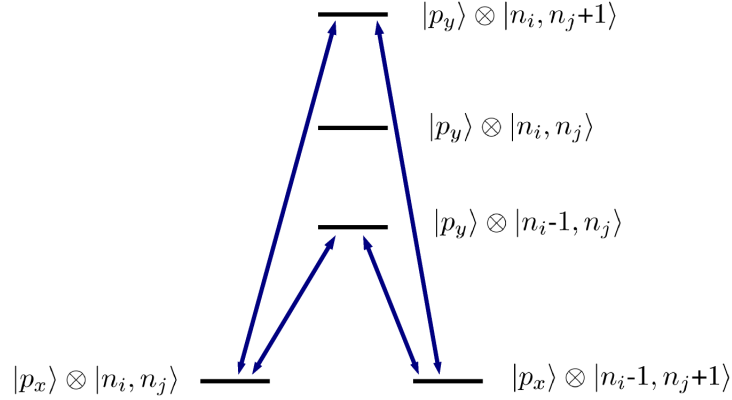


FIG. 5.6: Schéma des couplages intervenant dans les processus à 2 phonons. Les niveaux électron-phonons où l'électron est dans l'état  $p_y$  sont qualifiés de virtuels si l'énergie des phonons n'est pas résonante avec  $\Delta_{pp}$ .

Cela correspond à la règle d'or de Fermi pour l'absorption d'un phonon acoustique, le taux de déclin de la cohérence étant moitié de celui de la population.

Comme on le verra plus loin, les seuls processus d'absorption ne suffisent pas à rendre compte des valeurs mesurées de  $T_2$ . Dans la suite, on considère les processus d'ordre supérieur, impliquant deux phonons. Ces processus à deux phonons laissent l'état électronique  $p_x$  échangé, mais provoquent la décohérence de la superposition initiale d'états entre  $s$  et  $p_x$ .

**Processus à 1 et à 2 phonons** Afin de prendre en compte à la fois les transitions réelles et virtuelles, on considère à la fois les processus à 1 et à 2 phonons. Dans la suite, on prend en compte les couplages suivants (voir figure 5.6) : l'état initial  $|p_x\rangle \otimes |n_i, n_j, \dots\rangle$  est couplé à un continuum d'états, où l'électron est dans l'état  $p_y$  : ces états sont du type  $|p_y\rangle \otimes |n_i - 1, n_j\rangle$  ou  $|p_y\rangle \otimes |n_i, n_j + 1\rangle \dots$ . Ces états sont à leur tour couplés à un continuum où l'électron est de nouveau dans l'état  $p_x$ , mais avec 2 modes de phonons dont l'occupation diffère de l'état initial :  $|p_x\rangle \otimes |n_i - 1, n_j + 1\rangle$ . Dans la suite, nous traitons ce problème dans la mesure où l'on néglige le couplage aux états qui diffèrent de 3 phonons ou plus de l'état initial. Il est important de souligner que le calcul présenté ici est non-perturbatif, et va au-delà d'un simple développement au second ordre en terme des couplages  $M_q$  [88].

Les niveaux électron-phonons où l'électron est dans l'état  $p_y$  sont qualifiés de virtuels si l'énergie des phonons n'est pas résonante avec  $\Delta_{pp}$ . En effet, si ces états ne sont pas résonants avec l'état initial, il ne peut pas y avoir d'évolution irréversible totale.

Dans la suite on présente en détail le calcul de l'élargissement de la raie centrale, en tenant compte de façon non-perturbative des processus à un et deux phonons. Le résultat sera donné par l'équation 5.52 (dans une première lecture, on pourra se

## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

diriger directement vers cette équation).

Afin de développer l'équation 5.28, on définit un nouvel opérateur résolvante par  $G'(z) = 1/(z - QH_0Q - QVQ)$ . En introduisant 2 relations de fermetures dans l'équation 5.28 on obtient :

$$\langle p_x, \phi_0 | R(z) | p_x, \phi_0 \rangle = \sum_{\phi_a} \sum_{\phi_b} V_{0a} V_{b0} \langle p_y, \phi_a | G'(z) | p_y, \phi_b \rangle \quad (5.32)$$

avec  $V_{0a} = \langle p_x, \phi_0 | V | p_y, \phi_a \rangle$ . Ce terme est non nul seulement si  $\phi_a$  diffère de  $\phi_0$  par un seul phonon.

$|\phi_a\rangle$  et  $|\phi_b\rangle$  seront donc de la forme  $|n_1, \dots, n_i + 1, \dots, n_N\rangle$  (émission d'un phonon) ou  $|n_1, \dots, n_i - 1, \dots, n_N\rangle$  (absorption d'un phonon).

Formellement, on peut exprimer ces états de phonons comme  $\phi_a = A_{i,s_a} \phi_0$  et  $\phi_b = A_{j,s_b} \phi_0$ , avec les opérateurs  $A_{i,+} = a_i^+ / \sqrt{n_i + 1}$  et  $A_{i,-} = a_i / \sqrt{n_i}$ .

Nous définissons aussi  $\varepsilon_{a/b} = \pm \hbar \omega_{a,b}$ , le signe étant donné par  $s_{a/b}$ . Avec cette définition, nous avons  $V_{0a} = \sqrt{n_i} V_i$  ou  $V_{0a} = \sqrt{n_i + 1} V_i$  pour  $s_a = -$  ou  $+$  respectivement.

Nous avons maintenant à calculer l'opérateur résolvante dans lequel  $H_0$  et  $V$  ont été remplacés par  $QH_0Q$  et  $QVQ$ . On définit des nouveaux opérateurs de projection correspondant au sous-espace dans lequel  $G'$  doit être calculé :  $P'$  est l'opérateur de projection sur le sous-espace  $\{|p_y, \phi_a\rangle, |p_y, \phi_b\rangle\}$  et  $Q' = 1 - P'$ .

En remarquant que  $QP' = P'$ , on obtient d'après les équations 5.27 et 5.28 :

$$P'G'(z)P' = \frac{P'}{z - P'H_0P' - P'R'(z)P'} \quad (5.33)$$

avec

$$P'R'(z)P' = P'VG''(z)VP' \quad (5.34)$$

$$G''(z) = \frac{Q''}{z - Q''H_0Q'' - Q''VQ''} \quad (5.35)$$

où l'on a défini l'opérateur projection  $Q''$  par  $Q'' = QQ' = 1 - P - P'$ .

Dans la base  $\{|p_y, \phi_a\rangle, |p_y, \phi_b\rangle\}$ , l'équation 5.33 s'écrit :

$$P'G'(z)P' = \begin{pmatrix} z - E_a - R'_{aa}(z) & -R'_{ba}(z) \\ -R'_{ab}(z) & z - E_b - R'_{bb}(z) \end{pmatrix}^{-1} \quad (5.36)$$

avec  $E_a = \Delta_{pp} + \varepsilon_a$  et  $E_b = \Delta_{pp} + \varepsilon_b$ .

Comme on néglige les couplages aux états différant par 3 phonons de  $\phi_0$ , la contribution de  $Q''VQ''$  est nulle, de sorte que  $G''(z)$  peut être remplacé dans l'équation 5.34 par

$$G''_0(z) = \frac{Q''}{z - Q''H_0Q''} \quad (5.37)$$

$G''_0$  étant diagonale, on évalue dans la suite les éléments de matrice de  $R'$ .

### 5.3. Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

Évaluons tout d'abord les termes diagonaux, c'est à dire  $R'_{aa}(z)$  ou  $R'_{bb}(z)$  (les deux calculs sont identiques) :

$$R'_{aa}(z) = \sum_{\phi_c \neq \phi_0} |V_{ac}|^2 \langle p_x, \phi_c | G_0''(z) | p_x, \phi_c \rangle \quad (5.38)$$

Afin que  $V_{ac}$  soit non-nul,  $\phi_c$  doit différer de  $\phi_a$  par un seul phonon (un de plus ou un de moins). On peut donc décomposer en deux sommes, correspondantes à l'absorption et à l'émission d'un phonon. De plus, comme on s'intéresse aux fonctions de Green retardées, on évalue ce terme en  $E + i0^+$  :

$$R'_{aa}(E + i0^+) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{n_{\mathbf{q}} |M_{\mathbf{q}}|^2}{E - (\varepsilon_a - \hbar\omega_{\mathbf{q}}) + i0^+} + \frac{(n_{\mathbf{q}} + 1) |M_{\mathbf{q}}|^2}{E - (\varepsilon_a + \hbar\omega_{\mathbf{q}}) + i0^+} \quad (5.39)$$

La partie réelle correspond à un déplacement en énergie négligeable devant  $\Delta_{pp}$ . On ne garde donc que la partie imaginaire, qui s'écrit :

$$R'_{aa}(E + i0^+) = -\frac{i}{2} \gamma(E - \varepsilon_a) \quad (5.40)$$

où l'on a défini la fonction  $\gamma(\varepsilon)$  par :

$$\gamma(\varepsilon) = [N(|\varepsilon|) + \Theta(\varepsilon)] \Gamma_{pp}(|\varepsilon|) \quad (5.41)$$

Cette fonction correspond au taux d'absorption de phonons acoustiques pour  $\varepsilon < 0$  ou d'émission pour  $\varepsilon > 0$  à l'énergie  $|\varepsilon|$ .

Évaluons maintenant les termes non-diagonaux de  $R'$ , pour  $\phi_a$  différant de  $\phi_b$  :

$$R'_{ab}(z) = \sum_{\phi_c \neq \phi_0} V_{ac} V_{cb} \langle p_x, \phi_c | G_0''(z) | p_x, \phi_c \rangle \quad (5.42)$$

$V_{ac} V_{cb}$  est non-nul seulement si  $\phi_c$  est donné par  $\phi_c = A_{i,s_i} A_{j,s_j} \phi_0$  (on a nécessairement  $i \neq j$ ). Par conséquent,  $V_{ac} = V_{0b}$  et  $V_{cb} = V_{a0}$ . On a donc :

$$R'_{ab}(E + i0^+) = \frac{V_{0b} V_{a0}}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0} \quad (5.43)$$

La restriction de  $G'$  au sous-espace  $\{|e_2, \phi_a\rangle, |e_2, \phi_b\rangle\}$  s'écrit donc :

$$P' G'(E + i0^+) P' = \begin{pmatrix} E - (\Delta_{pp} + \varepsilon_a) + \frac{i}{2} \gamma(E - \varepsilon_a) & \frac{V_{0b} V_{a0}}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0} \\ \frac{V_{0a} V_{b0}}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0} & E - (\Delta_{pp} + \varepsilon_b) + \frac{i}{2} \gamma(E - \varepsilon_b) \end{pmatrix}^{-1} \quad (5.44)$$



## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

Cette expression fait apparaître une matrice à inverser. Les coefficients de la matrice inverse sont obtenus en remarquant que les termes en  $M_{\mathbf{q}}^4$  sont négligeables, étant donné que  $M_{\mathbf{q}}^2$  est proportionnel à l'inverse du nombre de cellules élémentaires du cristal. On a ainsi :

$$G'_{aa}(E + i0^+) = \frac{1}{E - (\Delta_{pp} + \varepsilon_a) + \frac{i}{2}\gamma(E - \varepsilon_a)} \quad (5.45a)$$

$$G'_{ab}(E + i0^+) = \frac{V_{0b}V_{a0}}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0^+} G'_{aa}(E + i0^+) G'_{bb}(E + i0^+) \quad (5.45b)$$

On peut maintenant revenir au calcul de l'équation 5.32 :

$$\langle p_x, \phi_0 | R(E + i0^+) | p_x, \phi_0 \rangle = \sum_{\phi_a} \left\{ |V_{0a}|^2 G'_{aa}(E + i0^+) + \sum_{\phi_b \neq a} V_{0a} V_{b0} G'_{ab}(E + i0^+) \right\} \quad (5.46)$$

$$R_{00}(E + i0^+) = \sum_{\phi_a} |V_{0a}|^2 G'_{aa}(E + i0^+) \left\{ 1 + \sum_{\phi_b \neq a} G'_{bb}(E + i0^+) \frac{|V_{0b}|^2}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0^+} \right\} \quad (5.47)$$

Le dernier terme dans l'expression ci-dessus peut s'exprimer comme :

$$\sum_{\phi_b \neq a} G'_{bb}(E + i0^+) \frac{|V_{0b}|^2}{E - (\varepsilon_a + \varepsilon_b) + i0^+} = -\frac{i}{2}\gamma(E - \varepsilon_a) \frac{1}{E - (\Delta_{pp} - \varepsilon_a) + \frac{i}{2}\gamma(\varepsilon_a)} \quad (5.48)$$

Après quelques manipulations algébriques, on trouve l'expression suivante :

$$R_{00}(E + i0^+) = \sum_{\phi_a} |V_{0a}|^2 \frac{\gamma(E - \varepsilon_a) (4\Delta_{pp}^2 - 2\Delta_{pp}\varepsilon_a + \frac{1}{4}\gamma(\varepsilon_a) [\gamma(\varepsilon_a) - \gamma(E - \varepsilon_a)])}{\left( (\Delta_{pp} + \varepsilon)^2 + \left[ \frac{\gamma(-\varepsilon)}{2} \right]^2 \right) \left( (\Delta_{pp} - \varepsilon)^2 + \left[ \frac{\gamma(\varepsilon)}{2} \right]^2 \right)} \quad (5.49)$$

Le temps de déphasage est évalué pour  $E = 0$  :

$$\langle p_x, \phi_0 | R(i0^+) | p_x, \phi_0 \rangle = \frac{-i}{2} \Gamma_2^* \quad (5.50)$$

avec

$$\Gamma_2^* = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} d\varepsilon \frac{\gamma(\varepsilon)\gamma(-\varepsilon) [4\Delta_{pp}^2 + (\gamma(\varepsilon) - \gamma(-\varepsilon))^2]}{\left( (\Delta_{pp} + \varepsilon)^2 + \left[ \frac{\gamma(-\varepsilon)}{2} \right]^2 \right) \left( (\Delta_{pp} - \varepsilon)^2 + \left[ \frac{\gamma(\varepsilon)}{2} \right]^2 \right)} \quad (5.51)$$

### 5.3. Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

qui peut s'écrire sous une forme plus explicite faisant apparaître les fonctions de Bose :

$$\Gamma_2^* = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} d\varepsilon \frac{\Gamma_{pp}^2(\varepsilon) N(\varepsilon) (N(\varepsilon) + 1) \left[ 4\Delta_{pp}^2 + \frac{\Gamma_{pp}^2(\varepsilon)}{4} \right]}{\left( (\Delta_{pp} + \varepsilon)^2 + \left[ N(\varepsilon) \frac{\Gamma_{pp}(\varepsilon)}{2} \right]^2 \right) \left( (\Delta_{pp} - \varepsilon)^2 + \left[ (N(\varepsilon) + 1) \frac{\Gamma_{pp}(\varepsilon)}{2} \right]^2 \right)} \quad (5.52)$$

Cette formule est valable quel que soit le signe de  $\Delta_{pp}$ . Dans le cas du déphasage du niveau  $p_x$ ,  $\Delta_{pp} > 0$  (on prendra  $\Delta_{pp} < 0$  si l'on s'intéresse au déphasage de  $p_y$ ).

En effectuant l'intégrale de contour dans l'équation 5.26, on obtient :

$$\langle p_x, \phi_0 | e^{-iHt/\hbar} | p_x, \phi_0 \rangle = e^{-\Gamma_2^* t/2\hbar} \quad (5.53)$$

$$P(t) = \sin(2\Theta) \cos(\omega_{sp_x} t) e^{-t/T_2} \quad (5.54)$$

avec  $\omega_{sp_x} = E_{sp_x}/\hbar$ .

Le calcul effectué ici inclut à la fois les transitions réelles ou virtuelles, puisque nous avons évalué la probabilité de rester dans l'état de phonon initial, en prenant en compte jusqu'à deux processus (émission et/ou absorption) de phonons.

Sur la figure 5.7, nous avons tracé  $\Gamma_2^*$  en fonction de  $\Delta_{pp}$  (c'est à dire pour des boîtes avec différentes anisotropies). Le calcul complet y apparaît en ligne pleine, alors que la règle d'or pour l'absorption (calcul limité aux processus à 1 phonon) est représenté en ligne pointillée. On s'aperçoit que le calcul complet apporte une correction négative lorsque  $\Delta_{pp}$  est de l'ordre de 2 ou 3 meV, alors que la correction est positive pour  $\Delta_{pp}$  supérieur à 3.5 meV.

Afin de mieux comprendre ce résultat, nous avons tracé, sur la figure 5.8, la fonction qui apparaît dans l'intégrale de l'équation 5.52 pour deux cas de figures :  $\Delta_{pp} = 2\text{meV}$  et  $\Delta_{pp} = 5\text{meV}$ . Ce dernier cas correspond à l'échantillon étudié expérimentalement. On appelle  $H$  cette fonction avec  $\Gamma_2^* = \int d\varepsilon H(\varepsilon)$ .

Étudions d'abord le cas où  $\Delta_{pp} = 5\text{meV}$ . La fonction  $H$  représenté en 5.8(b) comporte deux pics. Celui à 5 meV correspond aux transitions réelles. Lorsque les variations de  $\Gamma_{pp}(\varepsilon)$  sont faibles (c'est à dire  $d\Gamma_{pp}/d\varepsilon \ll 1$ ), ce pic a l'expression d'une lorentzienne :

$$H(\varepsilon \sim \Delta_{pp}) \sim \frac{\Gamma_{pp}^2(\varepsilon) N(\varepsilon) [N(\varepsilon) + 1]}{(\varepsilon - \Delta_{pp})^2 + \left( \frac{\Gamma_{pp}(\Delta_{pp}) [N(\Delta_{pp}) + 1]}{2} \right)^2} \quad (5.55)$$

L'intégrale autour de ce pic donne  $N(\Delta_{pp})\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})$ , ce qui correspond bien à la règle d'or pour l'absorption de phonons.

## Chapitre 5. Cohérence des transitions intrabandes

D'autre part, le pic large entre 1.5 et 4 meV est associé aux transitions virtuelles. On peut approximer ces transitions virtuelles par l'intégrale suivante, dont le domaine d'intégration exclut le voisinage du pic résonnant des transitions réelles :

$$\Gamma_2^{vir} \sim \frac{1}{2\pi} \int_{|\varepsilon - \Delta_{pp}| \gg \Gamma_{pp}} d\varepsilon \Gamma_{pp}^2(\varepsilon) N(\varepsilon) (N(\varepsilon) + 1) \frac{4\Delta_{pp}^2}{(\Delta_{pp}^2 - \varepsilon^2)^2} \quad (5.56)$$

Ce résultat peut être interprété comme la diffusion non-résonnante des phonons par la transition  $p_x$ - $p_y$ . L'élargissement dû à la diffusion des phonons peut s'exprimer comme :

$$\Gamma_2^* = 2\pi \sum_{i,j} |T_{ij}|^2 \delta(\varepsilon_i - \varepsilon_j) \quad (5.57)$$

où l'amplitude de diffusion du phonon du mode  $i$  vers le mode  $j$  s'écrit :

$$T_{ij} = \sum_{\psi} \frac{\langle p_x, \phi_0 | V | \psi \rangle \langle \psi | V | p_x, n_i + 1, n_j - 1 \rangle}{E_{\psi} - E_{p_x, \phi_0}} \quad (5.58)$$

Les deux états « virtuels » intervenant ici sont  $|\psi\rangle = |p_y, n_i, n_j + 1\rangle$  et  $|\psi\rangle = |p_y, n_i - 1, n_j\rangle$ .

Dans le cas où  $\Delta_{pp} = 2\text{meV}$ , la fonction à intégrer  $H$  est constituée d'un seul pic, centré environ en  $\Delta_{pp} = 2\text{meV}$ . Cependant, dans cette région,  $d\Gamma_{pp}/d\varepsilon$  est de l'ordre de 1. Par conséquent, on ne peut pas approximer la fonction  $H$  au voisinage de  $\Delta_{pp}$  par une lorentzienne. C'est pour cette raison que l'on a une correction négative par rapport à la règle d'or de Fermi : la fonction  $H$  décroît plus vite que la lorentzienne définit dans l'équation 5.55.

La distinction entre transitions réelles et virtuelles n'est donc valable que sous certaines conditions.

### 5.3.3 Comparaison théorie-expérience

Les symboles de la figure 5.9 présente la dépendance en température mesurée par le groupe de Sheffield pour la largeur homogène  $\Gamma_2 = 2\hbar/T_2$ . Le temps de déclin mesuré de la partie exponentielle du signal d'écho de photon diminue de  $\approx 22$  à 10 K à  $\approx 3$  ps à 100 K. Le temps de déphasage  $T_2$  passe donc de  $\approx 88$  ps à  $\approx 12$  ps sur cet intervalle de température. Sur la figure 5.9, nous avons également tracé la largeur totale calculée de la raie à zéro phonon  $\Gamma_2 = \Gamma_1 + \Gamma_2^*$  (ligne pleine). On obtient un bon accord avec les résultats expérimentaux. On a représenté également les contributions des transitions réelles ( $N(\Delta_{pp})\Gamma_{pp}(\Delta_{pp})$ ) ou virtuelles au déphasage. De façon remarquable, les contributions des transitions réelles et virtuelles sont comparables jusqu'à 60K. Au-delà, les transitions virtuelles l'emportent étant donné que leur dépendance en température est en  $T^2$ . La largeur homogène totale  $\Gamma_2$  (calculée et mesurée) augmente rapidement de  $\approx 15 \mu\text{eV}$  à  $\approx 150$  lorsque la température

### 5.3. Transitions réelles et virtuelles vers $p_y$

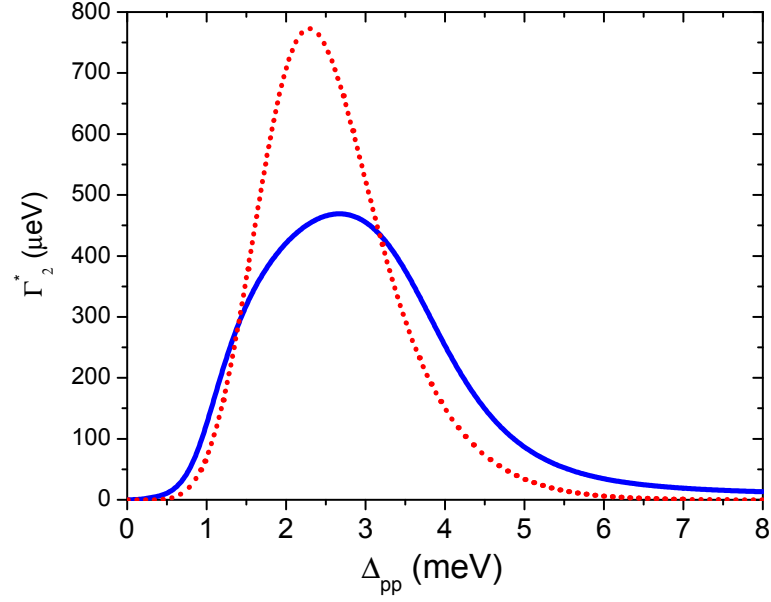


FIG. 5.7: Largeur homogène de la transition  $s$ - $p_x$  en fonction de  $\Delta_{pp}$  à  $T = 100$  K. Règle d'or de Fermi (processus à 1 phonon) en ligne pointillée, calcul complet (incluant les processus jusqu'à 2 phonons) en ligne pleine.

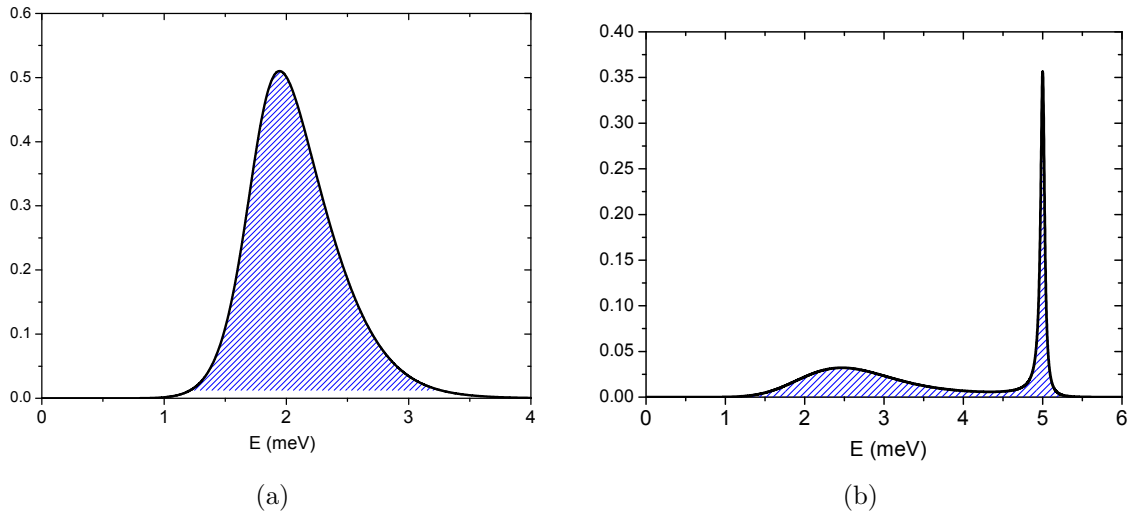


FIG. 5.8: Fonction  $H$  pour des valeurs de séparation anisotrope  $\Delta_{pp} = 2$  meV (a) et  $\Delta_{pp} = 5$  meV (b) à  $T = 100$  K. L'aire sous chacune des courbes est égale à la largeur  $\Gamma_2^*$ .

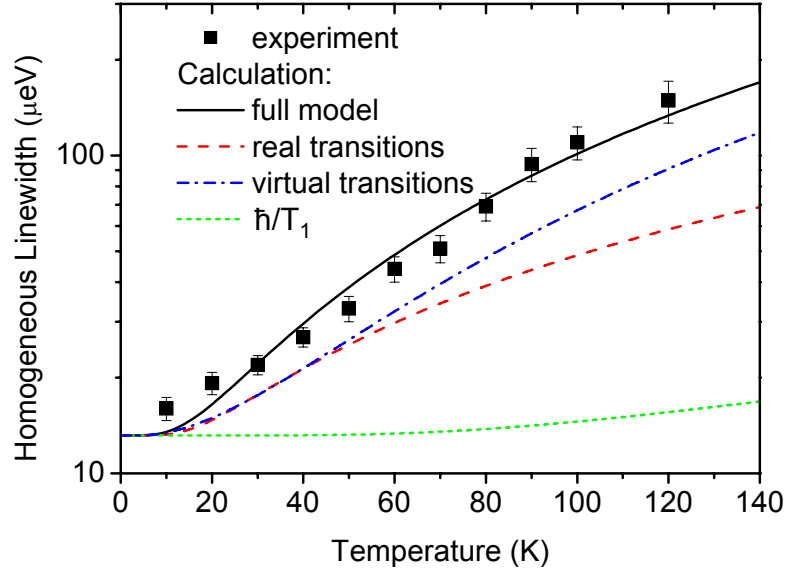


FIG. 5.9: Dépendance en température de la largeur homogène des transitions intrabandes : expériences (symboles), calculs incluant uniquement les transitions réelles (ligne tiretée) ou virtuelles (ligne tiretée-pointillée) et calcul complet (ligne pleine). La ligne pointillée montre la dépendance en température de la relaxation de la population.

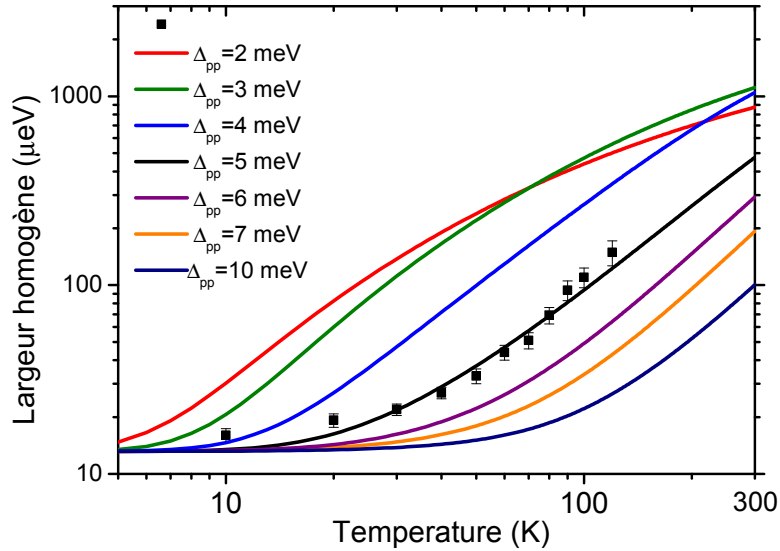


FIG. 5.10: Largeur homogène de la raie à zéro-phonon en fonction de la température pour différentes anisotropies.

## 5.4. Echo de photon : comparaison théorie-expérience

passse de 10 à 120K. Cette forte augmentation contraste avec la faible dépendance en température de la relaxation de la population des polarons vers le fondamental  $\Gamma_1$ . Ainsi, les mécanismes de déphasage pur sont dominants à haute température.

Sur la figure 5.10, on a représenté le calcul de la largeur homogène pour différentes séparations anisotropes  $\Delta_{pp}$  et pour des températures allant jusqu'à l'ambiante. A température élevée, pour  $\Delta_{pp} \geq 5\text{meV}$ , ce sont les transitions virtuelles qui dominent. Par conséquent la dépendance en température est quadratique, ce qui donne une pente de 2 en échelle log-log. La situation est différente pour les séparations anisotropes de 2 ou 3meV, où ce sont des transitions réelles qui dominent. D'après la règle d'or de Fermi, la dépendance en température devrait alors être linéaire. Cependant, du fait des corrections négatives apportées par la prise en compte des 2 processus phonons, la pente décroît à forte température.

Pour les températures élevées, il faut garder à l'esprit que la contribution relative des ailes de phonons par rapport à la raie centrale augmente également. On reviendra à la figure 5.5, où l'absorption d'une boîte unique est calculée pour des températures de 100, 200 et 300K. A température ambiante, la raie à zéro-phonon, de 0.5 meV de largeur, a une contribution à l'absorption environ égale à celle des ailes de phonons (voir figure 5.12), dont la largeur est de plusieurs meV.

## 5.4 Echo de photon : comparaison théorie-expérience

Nous avons calculé la dynamique d'écho de photon résonnant avec la transition  $s-p_x$ . Le calcul est présenté en annexe B. Nous prenons en compte les ailes de phonons acoustiques, ainsi que l'élargissement dû à la relaxation du polaron et aux transitions réelles et virtuelles. Le calcul du mélange à quatre ondes en présence d'ailes de phonons acoustiques avait déjà été calculé dans la référence [89]. Dans l'annexe B, nous présentons un calcul de ce signal d'écho de photon en présence d'ailes de phonons acoustiques en employant une méthode différente. L'intensité de l'écho de photon en réponse à 2 impulsions delta espacées d'un temps  $t$  s'écrit :

$$I(t) \propto \Theta(t) \exp \left[ -\frac{2\Gamma_2 t}{\hbar} - 16 \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon f(\varepsilon) \sin^4 \left( \frac{\varepsilon t}{2\hbar} \right) \right] \quad (5.59)$$

Les résultats expérimentaux pour une énergie de 53 meV sont comparés aux simulations sur la figure 5.11. Nos calculs montrent des oscillations amorties aux temps courts. Cependant, dans les résultats expérimentaux, ces oscillations sont beaucoup moins marquées. Afin de comparer nos calculs aux résultats expérimentaux, nous les avons convolué avec une gaussienne de largeur 1.5 ps, afin de rendre compte de la largeur des impulsions (voir annexe B). Ceci a pour effet de multiplier les ailes de phonons acoustiques par une gaussienne de largeur  $\hbar/1.5 \sim 0.4\text{meV}$ . L'effet est

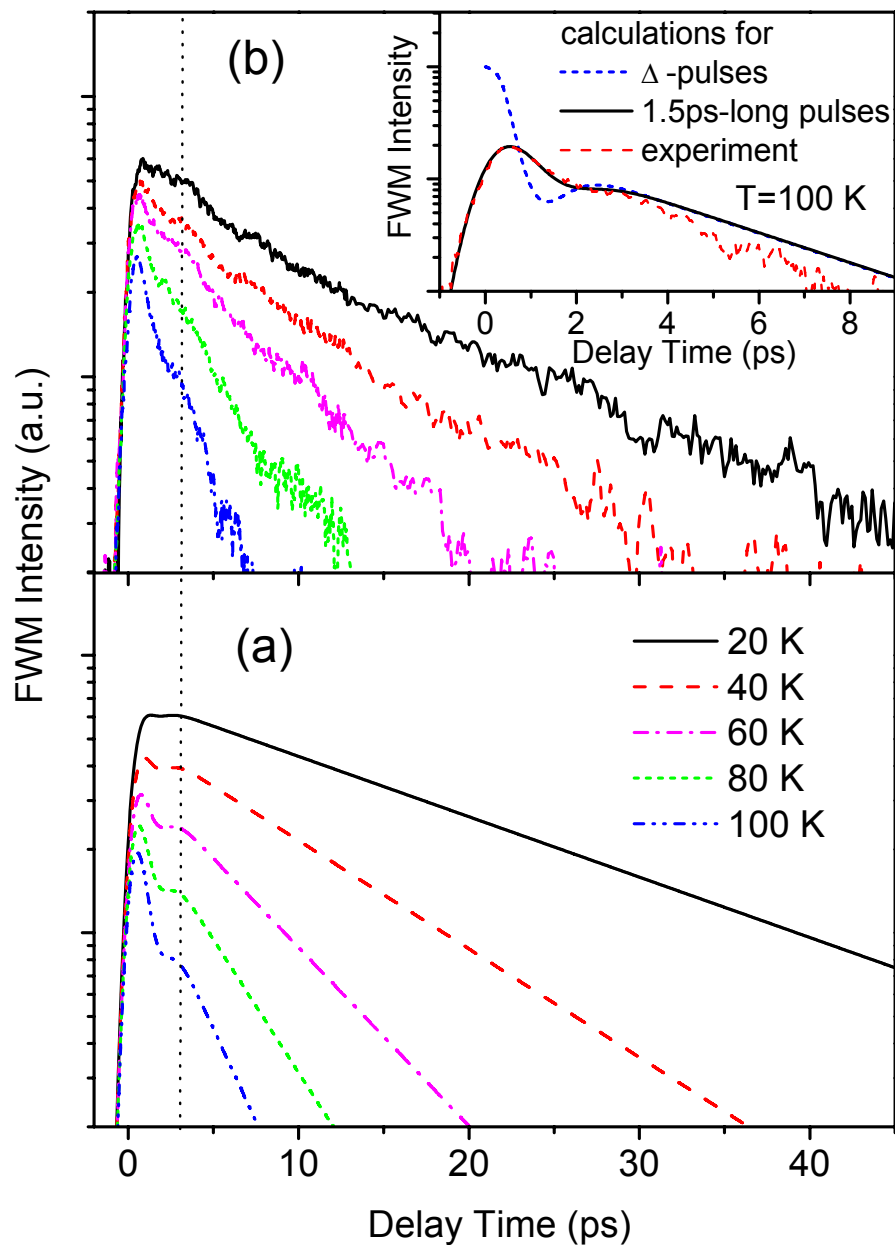


FIG. 5.11: Signaux d'écho de photon pour différentes températures : simulations (a) et expériences (b). Encart : Calcul de l'écho de photon pour une impulsion Dirac (ligne pointillée), et convolué avec une impulsion de 1.5ps (ligne pleine), comparé avec les résultats expérimentaux (ligne tiretée) pour une température de 100K.

#### 5.4. Echo de photon : comparaison théorie-expérience

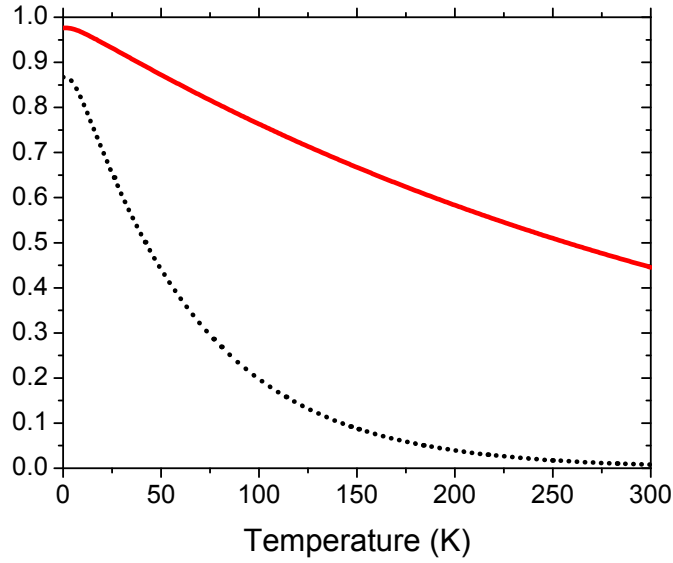


FIG. 5.12: Intensité relative de la raie à zéro-phonon  $Z$  en fonction de la température (ligne pleine). On a également représenté  $Z^6$ , qui détermine la contribution relative de l'intensité de la composante exponentielle dans l'écho de photon (ligne pointillée).

donc de diminuer l'intensité relative des ailes de phonons acoustiques. C'est pourquoi, après convolution, l'oscillation amortie reste visible mais est beaucoup moins marquée. Cette oscillation est observée également sur les signaux expérimentaux<sup>3</sup>. La période de ces oscillations est donnée approximativement par  $\hbar/\varepsilon_1$ , où  $\varepsilon_1 \approx 1.5$  meV est la séparation énergétique entre la raie à zéro-phonon et les pics des ailes de phonons sur la figure 5.4. Comme attendu, cette oscillation devient plus importante lorsque la température augmente, étant donné que l'intensité relative des ailes de phonons augmente. Sur la figure 5.12, nous avons représenté  $Z$ , le poids de la raie à zéro-phonon en fonction de la température. En analysant l'équation 5.59, on trouve que l'intensité aux temps longs (c'est à dire pour  $t$  grand devant le temps  $\frac{\hbar}{\varepsilon_1}$  de décroissance des ailes de phonons) est proportionnelle à :

$$I\left(t \gg \frac{\hbar}{\varepsilon_1}\right) \propto Z^6 \exp\left[-\frac{2\Gamma_2 t}{\hbar}\right] \quad (5.60)$$

La composante exponentielle de l'intensité d'écho de photon est donc proportionnelle à  $Z^6$ . Ce facteur est représenté en pointillé sur la figure 5.12. La composante exponentielle de l'intensité de l'écho de photon est ainsi divisé par 3.5 lorsqu'on passe de 20 à 100 K. On retrouve cet effet sur les mesures (figure 5.11), même si la diminution est légèrement moins marquée expérimentalement. La diminution du

<sup>3</sup>Expérimentalement, pour s'assurer que cette oscillation est bien un effet intrinsèque aux boîtes (et non par exemple un effet de réflexion sur les faces de l'échantillon), l'angle d'incidence a été varié, sans effet sur la période de ces oscillations.



poids de la raie à rétro-phonon avec la température est néanmoins beaucoup moins forte que dans le cas des transitions interbandes. Dans la référence [90],  $Z \sim 0.3$  à  $T=100\text{K}$  pour des transitions excitoniques, alors que nous calculons  $Z = 0.77$  ici à cette même température.

## Conclusion

En résumé, nous avons étudié en détail les propriétés de cohérence de la transition intrabande fondamentale des boîtes dopées  $n$ . La comparaison entre les expériences de mélange à quatre ondes et nos calculs permettent de mettre en avant plusieurs caractéristiques intéressantes :

- A température inférieure à 10K, la décohérence est causée essentiellement par la relaxation anharmonique des polarons étudiée au chapitre 3.
- Les ailes de phonons intrabandes sont nettement différentes des ailes interbandes qui avaient été étudiées précédemment dans les boîtes quantiques. Elles sont d'une part beaucoup moins intenses, ce qui signifie que la transition est dominée par la raie à zéro-phonon, même à température élevée (contrairement aux transitions interbandes). D'autre part, leur forme est constituée de 2 pics distincts de part et d'autre de la raie à zéro-phonon. En conséquence, la dynamique d'écho de photon montre une oscillation aux temps courts ( $< 5$  ps), qui correspond à l'excitation cohérente de cet ensemble de 3 pics.
- Les transitions réelles et virtuelles vers l'état  $p_y$  jouent un rôle comparable dans la décohérence à température non-nulle. Ceci est dû au fait que la séparation anisotrope  $\Delta_{pp}$  de 5 meV est différente de l'énergie des phonons qui se couplent le plus efficacement à cette transition (environ 2 meV).

# Conclusion

Dans cette thèse, nous avons étudié plusieurs phénomènes de relaxation ayant trait à la population, au spin ou à la cohérence dans les boîtes quantiques de semi-conducteur. Ces trois processus ont pour point commun une évolution irréversible induite par le couplage au réservoir constitué par les vibrations du réseau.

Nous avons vu au préalable qu'il y avait un couplage fort électron-phonon-LO, qui nécessitait d'introduire le concept de polarons. Ce couplage fort a été également mis en évidence sur les états excitoniques par des expériences de PLE en champ magnétique. Nous avons pris en compte les couplages de Fröhlich entre les états mixtes excitons-phonons. Le calcul de l'absorption des niveaux de polarons excitoniques est en bon accord avec les mesures de PLE, avec en particulier un anticroisement entre deux états mixtes excitons-phonons.

Une des conséquences de ce couplage fort est l'impossibilité d'émettre un phonon-LO pour relaxer l'énergie. La relaxation des polarons a tout de même lieu, via l'instabilité de sa composante phonon-LO. Mais le mécanisme en jeu n'est pas forcément celui connu dans le massif. En effet, il faut prendre en compte tous les mécanismes pouvant satisfaire la conservation de l'énergie du polaron. L'efficacité des différents processus anharmoniques est très sensible à l'énergie du polaron. Ainsi, contrairement au modèle semi-classique employé jusque là, ce n'est pas seulement le poids de la composante phonon-LO du polaron qui détermine le temps de vie. Notre modèle nous permet d'expliquer la diminution du temps de vie des polarons aux énergies supérieures à 50meV, due à l'apparition d'un canal anharmonique beaucoup plus efficace. Pour les énergies inférieures à celles du phonon optique, nous calculons une très forte dépendance en énergie du temps de vie. Ceci a été confirmé par des expériences sur des boîtes recuites, où les temps de vie mesurés varient de quelques picosecondes jusqu'à une nanoseconde.

Ce travail ouvre également la voie à une étude sur la dynamique de relaxation des niveaux de polarons excitoniques. Une autre perspective intéressante serait le calcul de la relaxation anharmonique pour les états à énergie supérieure à 60 meV. En effet, ces états ont un faible caractère polaronique, mais les termes anharmoniques d'ordre 4 pourraient néanmoins conduire à une relaxation rapide par désintégration en 3 phonons.

Lors de l'étude de la dynamique de relaxation dans les boîtes doublement chargées, on a fait intervenir le degré de liberté de spin. Le retournement du spin entre

## Conclusion

---

états singulets et triplets est responsable d'une composante longue dans les expériences pompe-sonde. Les temps mis en jeu pour retourner le spin sont longs devant les autres temps de relaxation. Mais, de façon surprenante, ils sont bien plus courts que ceux mesurés entre sous-niveaux Zeeman. Le couplage à l'origine des deux phénomènes de retournement de spin est pourtant le même terme spin-orbite. La différence réside en partie dans les énergies en jeu, induisant des mécanismes différents : l'émission de phonons acoustiques par couplages piézoélectriques a lieu uniquement aux très faibles énergies, alors que le potentiel de déformation induit l'émission de phonons acoustiques d'énergies de l'ordre du meV. Aux énergies de l'ordre de la dizaine de meV, les mécanismes anharmoniques l'emportent. Ce dernier mécanisme est responsable de la relaxation des états triplets à basse température, avec un temps de vie environ 2 ordres de grandeur plus grand que la relaxation des polarons singulets. D'autre part, nous avons mis en évidence que le mécanisme de retournement de spin entre niveaux excités singulets et triplets était très sensible à l'anisotropie des boîtes. Ces études pourraient être utiles pour la compréhension et la conception d'expériences de préparation du spin d'un électron dans l'état fondamental par pompage via les états excités.

La cohérence des transitions intrabandes entre l'état fondamental et le premier état excité a finalement été étudiée. Alors qu'à basse température, la cohérence est limitée par la relaxation des polarons vers l'état fondamental, le temps de cohérence diminue beaucoup plus rapidement que le temps de vie lorsque la température augmente. Ceci ne peut s'expliquer qu'en prenant en compte à la fois les transitions réelles et virtuelles vers l'état  $p$  de plus haute énergie. D'autre part, la forme piquée des ailes de phonons acoustiques est caractéristique des transitions intrabandes, et entraîne des oscillations amorties dans le signal d'écho de photon. Ces calculs sont en bon accord avec les mesures de mélange à quatre ondes dégénéré. Ces études imposent des limitations aux éventuelles applications en information quantique. Il ressort notamment que la largeur de ces transitions intrabandes à température ambiante pourrait être contrôlée dans une certaine mesure via l'anisotropie des boîtes quantiques.

En résumé, cette thèse souligne le caractère primordial des couplages aux phonons dans la physique des boîtes quantiques. Les mécanismes de relaxation des populations, du spin, ou la cohérence, dépendent en grande partie des énergies en jeu. En particulier, pour des énergies supérieures à quelques meV, le formalisme des polarons ainsi que le traitement détaillé de l'anharmonicité du cristal sont essentiels afin de rendre compte de ces mécanismes de relaxation.

# Annexe A

## Couplage Huang-Rhys à un continuum de phonons

Le problème du couplage de type Huang-Rhys est abordé par exemple dans la référence [84], dans le cas général d'une interaction avec un nombre potentiellement fini de phonons. Nous présentons ici une approche simple de traiter le couplage de Huang-Rhys dans le cas où les phonons constituent un continuum. En particulier, lorsqu'on fera tendre la taille du cristal vers l'infini, les termes impliquant plusieurs fois le même mode de phonon vont être négligeables.

L'hamiltonien des phonons non-perturbés s'écrit :

$$H_0 = \sum_q \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q \quad (\text{A.1})$$

Les états propres sont de la forme  $|n_{q_1} \dots n_{q_i} \dots\rangle$ , avec  $|n_{q_i}\rangle = \frac{(a_{q_i}^\dagger)^{n_{q_i}}}{\sqrt{n_{q_i}!}} |0\rangle$

En ajoutant l'interaction électron-phonon, on obtient :

$$H = \sum_q \{ \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q + (M_q a_q + M_q^* a_q^\dagger) \} \quad (\text{A.2})$$

On introduit alors les opérateurs d'annihilation et de création suivants :

$$b_q^{(+)} = a_q^{(+)} + \frac{M_q^{(*)}}{\hbar\omega_q} = a_q^{(+)} + S_q^{(*)} \quad (\text{A.3})$$

où  $S_q = M_q/\hbar\omega_q$ . Remarquons que  $M_q$  dépend du nombre  $N$  de cellules élémentaires du cristal et peut s'écrire comme  $M_q = \frac{v_q}{\sqrt{N}}$  où  $v_q$  est indépendant de  $N$  à la limite continue. On définit également  $s_q$  par  $S_q = \frac{s_q}{\sqrt{N}}$ . Comme on fera tendre  $N$  vers l'infini au final, et que la sommation sur le volume total du cristal introduira un facteur  $N$ , on ne garde que les termes jusqu'à l'ordre 2 en  $S$ . Par ailleurs, on remarque

## Annexe A. Couplage Huang-Rhys à un continuum de phonons

que l'élément de matrice diagonal  $M_q$  (et donc aussi  $S_q$ ) est réel pour les états des boîtes quantiques.

On vérifie que les opérateurs  $b$  et  $b^+$  satisfont aux relations de commutations des bosons :

$$[b_q, b_{q'}^+] = \delta_{q,q'} \quad (\text{A.4})$$

L'hamiltonien peut alors être réécrit comme une somme d'oscillateurs harmoniques :

$$H = \sum_q \hbar\omega_q b_q^+ b_q - \sum_q \frac{|M_q|^2}{\hbar\omega_q} \quad (\text{A.5})$$

L'énergie de l'état fondamental est décalé vers le rouge de  $\sum_q \frac{|M_q|^2}{\hbar\omega_q}$ .

Les états propres de chaque oscillateur s'écrivent :  $|\widetilde{n}_{q_i}\rangle = \frac{(b^+)^n}{\sqrt{n!}} |\widetilde{0}_{q_i}\rangle$ .

Exprimons maintenant ces nouveaux états propres dans la base des états propres non-perturbés.

Tout d'abord l'état fondamental, que l'on écrit  $|\widetilde{0}\rangle = \sum_n \alpha_n |n\rangle$ , doit vérifier :

$$b|\widetilde{0}\rangle = (a + S)|\widetilde{0}\rangle = 0 \quad (\text{A.6})$$

Cette relation implique que  $\alpha_{n+1}\sqrt{n+1} = -S\alpha_n$ , et par conséquent :

$$\alpha_n = \frac{-S^n}{\sqrt{n!}} \alpha_0 \quad (\text{A.7})$$

On en déduit l'expression du fondamental :

$$|\widetilde{0}\rangle = \exp(-S^2/2) \exp(-Sa^+) |0\rangle \quad (\text{A.8})$$

Les états excités peuvent être alors exprimés :

$$\begin{aligned} |\widetilde{n}\rangle &= \frac{(b^+)^n}{\sqrt{n!}} |\widetilde{0}\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{n!}} \sum_{m=0}^n \frac{n!}{m!(n-m)!} S^m (a^+)^{n-m} |\widetilde{0}\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{n!}} \exp(-S^2/2) \left\{ (1 - nS^2) (a^+)^n + nS(a^+)^{n-1} - S(a^+)^{n+1} \right. \\ &\quad \left. + \frac{S^2}{2} [(a^+)^{n+2} + n(n-1)(a^+)^{n-2}] + O(S^3) \right\} |0\rangle \\ &= \left( 1 - \frac{2n+1}{2} S^2 \right) |n\rangle + \sqrt{n} S |n-1\rangle - \sqrt{n+1} S |n+1\rangle \\ &\quad + \frac{S^2}{2} \left( \sqrt{(n+1)(n+2)} |n+2\rangle + \sqrt{n(n-1)} |n-2\rangle \right) + O(S^3) \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

où l'on a développée l'expression au second ordre en  $S$ . Les termes d'ordres 3 ou supérieurs (désignés par  $O(S^3)$ ) sont en  $N^{-3/2}$ . Dans la suite leur contribution va tendre vers 0 dans les sommes qui portent sur les  $N$  cellules élémentaires.

Les états propres de l'hamiltonien total sont  $|\widetilde{n}_{q_1} \dots \widetilde{n}_{q_N} \dots\rangle$ . Calculons leur produit scalaire avec les états propres non-perturbés à même nombre d'occupation  $|n_{q_1} \dots n_{q_N}\rangle$  :

$$\begin{aligned} \langle n_{q_1} \dots n_{q_N} | \widetilde{n}_{q_1} \dots \widetilde{n}_{q_N} \rangle &= \prod_{i=1}^N \langle n_{q_i} | \widetilde{n}_{q_i} \rangle \\ &= \prod_{i=1}^N \left( 1 - \frac{2n_i + 1}{2N} s_i^2 + O\left(\frac{1}{N^{3/2}}\right) \right) \\ &\underset{N \rightarrow \infty}{=} \exp \left( -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{2n_i + 1}{2} s_i^2 \right) \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

étant donné que  $(1 - x/N)^N = e^{N \ln(1-x/N)} \underset{N \rightarrow \infty}{=} e^{-x}$ . A la limite continu, on peut remplacer les sommes par des intégrales :

$$\sum_{i=1}^N \rightarrow \frac{NV_0}{(2\pi)^3} \int_{q=0}^{+\infty} q^2 dq \int_{\theta=0}^{\pi} \sin \theta d\theta \int_{\varphi=0}^{2\pi} d\varphi \quad (\text{A.11})$$

On définit  $\overline{s^2(q)}$  comme la moyenne angulaire de  $s^2(\mathbf{q})$  :

$$\overline{s(q)^2} = \frac{1}{4\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} \sin \theta d\theta \int_{\varphi=0}^{2\pi} d\varphi s^2(\mathbf{q}) \quad (\text{A.12})$$

$$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{2n_i + 1}{2} s_i^2 \rightarrow \frac{V}{2\pi^2} \int_{q=0}^{+\infty} q^2 dq \frac{2n + 1}{2} \overline{s^2(q)} \quad (\text{A.13})$$

La densité d'états à l'énergie  $E = \hbar c_s q$  (la dispersion des phonons acoustiques est supposée linéaire) est définie par :

$$\rho(E) = \frac{V_0 E^2}{2\pi^2 (\hbar c_s)^3} \quad (\text{A.14})$$

On a alors :

$$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{2n_i + 1}{2} s_i^2 \xrightarrow{N \rightarrow \infty} \int_0^{+\infty} dE \rho(E) \frac{2n(E) + 1}{2} \overline{s^2(E)} \quad (\text{A.15})$$

$$|\langle n_{q_1} \dots n_{q_N} | \widetilde{n}_{q_1} \dots \widetilde{n}_{q_N} \rangle|^2 \underset{N \rightarrow \infty}{=} \exp \left( - \int_0^{+\infty} dE \rho(E) (2n(E) + 1) \overline{s^2(E)} \right) \quad (\text{A.16})$$

## Annexe A. Couplage Huang-Rhys à un continuum de phonons

On définit la fonction  $f(E)$  comme suit :

$$f(E) = \begin{cases} \rho(|E|)n(|E|)\overline{s^2(|E|)}, & \text{si } E < 0 \\ \rho(|E|)(n(|E|) + 1)\overline{s^2(|E|)}, & \text{si } E > 0 \end{cases} \quad (\text{A.17})$$

$$|\langle n_{q_1} \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle|^2 \underset{N \rightarrow \infty}{=} \exp \left( - \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) \right) \quad (\text{A.18})$$

Ce coefficient représente le poids de la raie à zéro phonon que l'on note  $Z = \exp \left( - \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) \right)$ .

Évaluons maintenant le produit scalaire avec les états non perturbés différant par un seul phonon :

$$\begin{aligned} \langle n_{q_1} \dots n_{q_j} - 1 \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle &= \langle n_{q_j} - 1 | \widetilde{n_{q_j}} \rangle \prod_{i \neq j} \langle n_{q_i} | \widetilde{n_{q_i}} \rangle \\ &= \sqrt{n_j} S_j \sqrt{Z} \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

$$\begin{aligned} \langle n_{q_1} \dots n_{q_j} + 1 \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle &= \langle n_{q_j} + 1 | \widetilde{n_{q_j}} \rangle \prod_{i \neq j} \langle n_{q_i} | \widetilde{n_{q_i}} \rangle \\ &= -\sqrt{n_j + 1} S_j \sqrt{Z} \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

On a donc :

$$|\langle n_{q_1} \dots n_{q_j} - 1 \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle|^2 = n_j S_j^2 Z \quad (\text{A.21})$$

$$|\langle n_{q_1} \dots n_{q_j} + 1 \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle|^2 = (n_j + 1) S_j^2 Z \quad (\text{A.22})$$

Par conséquent :

$$\sum_j |\langle n_{q_1} \dots n_{q_j} \pm 1 \dots n_{q_N} | \widetilde{n_{q_1}} \dots \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_N}} \rangle|^2 \delta(E \mp \hbar \omega_i) = f(\pm E) Z \quad (\text{A.23})$$

Pour le recouvrement avec les états non-perturbés différant par 2 phonons, remarquons que les états différents par 2 phonons dans le même mode donnent une contribution nulle à la limite continue. En effet, les modules carrés des recouvrements sont en  $S^4$ , c'est-à-dire en  $1/N^2$ , ce qui donne par la suite une sommation qui tend vers 0. Reste à évaluer le recouvrement avec les états où 2 nombres d'occupations dans deux modes distincts diffèrent :

$$\langle n_{q_j} \pm 1 \dots n_{q_l} \pm 1 | \widetilde{n_{q_j}} \dots \widetilde{n_{q_l}} \rangle = \langle n_{q_j} \pm 1 | \widetilde{n_{q_j}} \rangle \langle n_{q_l} \pm 1 | \widetilde{n_{q_l}} \rangle \prod_{i \neq j} \langle n_{q_i} | \widetilde{n_{q_i}} \rangle \quad (\text{A.24})$$

---


$$\begin{aligned}
& \sum_i \sum_{j>i} |\langle n_{q_j} \pm 1 \dots n_{q_l} \pm 1 | \widetilde{n}_{q_j} \dots \widetilde{n}_{q_l} \rangle|^2 \delta(E \mp \hbar\omega_i \mp \hbar\omega_j) \\
&= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} dE' f(E') f(E - E') Z \\
&= \frac{1}{2} [f \otimes f](E) Z
\end{aligned} \tag{A.25}$$

On peut généraliser cette formule à des recouvrements avec des états où  $p$  phonons diffèrent :

$$\begin{aligned}
& \prod_{i=1}^p \sum_{i>i-1} |\langle n_{i_1} \pm 1 \dots n_{i_p} \pm 1 | \widetilde{n}_{i_1} \dots \widetilde{n}_{i_p} \rangle|^2 \delta \left( E - \sum_{i=1}^p \pm \hbar\omega_i \right) \\
&= \frac{1}{p!} [f \otimes^p f](E) Z
\end{aligned} \tag{A.26}$$

**Absorption** On considère les niveaux  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$ , d'énergies  $E_g < E_e$ . On suppose que les états propres de phonons dans le niveau  $|g\rangle$  sont générés par les opérateurs  $a_q^+$ , et ceux du niveau  $|e\rangle$  correspondant à  $b_q^+$ . Le spectre d'absorption normalisée entre les deux niveaux  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$  est donnée par :

$$A(E) = \sum_i p(i) \sum_f |\langle i|d|f\rangle|^2 \delta(E + E_i - E_f) \tag{A.27}$$

où l'énergie  $E$  est comptée à partir de celle de transition électronique  $E_e - E_g$ , et où les états propres initiaux et finaux sont de la forme  $|i\rangle = |g, \prod_i n_i\rangle$  et  $|f\rangle = |e, \prod_i \tilde{n}_i\rangle$ , d'énergies  $E_g + E_i$  et  $E_e + E_f$  et  $d = |g\rangle\langle e| + |e\rangle\langle g|$  est l'opérateur dipolaire.  $p(i)$  est la probabilité d'occupation thermique de l'état initial  $i$ . En explicitant les états de phonons, on obtient :

$$A(E) = \sum_{|\prod_i \tilde{n}_i\rangle} \left| \langle \prod_i n_i | \prod_i \tilde{n}_i \rangle \right|^2 \delta \left( E - \sum_i \hbar\omega(n_i - \tilde{n}_i) \right) \tag{A.28}$$

La somme explicite de la moyenne thermique peut être supprimée puisque nous considérons un mode initial constitué par une infinité de modes de phonons satisfaisant la distribution de Bose Einstein. L'expression ci-dessus est constituée par les termes de recouvrement que nous avons exprimé plus haut. On a donc :

$$A(E) = Z e^f(E) \tag{A.29}$$

où l'exponentiel de la fonction  $f$  est prise au sens du produit de convolution :  $e^f = \delta(E) + f(E) + \frac{1}{2}[f \otimes f](E) + \dots + \frac{1}{p!}[f \otimes^{p-1} f](E)$ .



## Annexe A. Couplage Huang-Rhys à un continuum de phonons

---

On vérifie aisément que cette fonction est normalisée :  $\int_{-\infty}^{+\infty} dE A(E) = 1$

On a ainsi montré que les ailes de phonons sont données par la somme des contributions de processus à  $p$ -phonons, où chacune de ces contributions s'expriment par une puissance  $p - 1$  du produit de convolution de la fonction  $f$  représentant les processus à un seul phonon.

En remarquant que la transformée de Fourier d'un produit de convolution est le produit scalaire des transformées de Fourier, on peut également écrire l'absorption sous la forme :

$$A(E) = \frac{1}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) (e^{-iEt/\hbar} - 1) \right] e^{-iEt/\hbar} \quad (\text{A.30})$$

On peut aussi arriver à cette dernière expression en prenant la transformée de Fourier de l'évolution de la cohérence calculé directement (voir par exemple la référence [86]).

## Annexe B

# Écho de photon en présence d'ailes de phonons

Nous nous intéressons ici aux conséquences de la présence d'ailes de phonons sur la cohérence de la transition.

On considère la technique de mélange à quatre ondes dégénéré. L'écho de photon consiste à envoyer 2 impulsions séparées d'un délai  $\tau$  dans des directions  $k_1$  puis  $k_2$ . A un temps  $t = 2\tau$ , l'écho est généré de façon cohérente dans la direction  $2k_1 - k_2$ . Nous allons décrire comment la mesure de l'intensité de cet écho est relié aux propriétés de cohérence du système étudié. Cette technique, qui est l'analogue de l'écho de spin employée en résonance magnétique nucléaire, permet de s'affranchir de l'élargissement inhomogène. Dans une première section, nous étudierons l'écho de photon pour un système présentant un déphasage exponentiel. Puis nous prendrons en compte la présence d'ailes de phonons acoustiques dans le calcul du signal d'écho de photon.

### B.1 Cas d'un déphasage exponentiel

Dans un premier temps, on décrit l'expérience d'écho de photon dans un cas idéal où il n'y a pas d'ailes de phonons. On suppose seulement que la cohérence de l'état excité décroît exponentiellement.

On considère un système à 2 niveaux électroniques excité par deux impulsions delta aux temps  $t = 0$  et  $t = \tau$ . Les matrices d'évolution correspondantes aux deux impulsions delta sont des rotations :

$$U_1 = \begin{pmatrix} \cos \theta_1 & \sin \theta_1 \\ -\sin \theta_1 & \cos \theta_1 \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

$$U_2 = \begin{pmatrix} \cos \theta_2 & \sin \theta_2 \\ -\sin \theta_2 & \cos \theta_2 \end{pmatrix} \quad (\text{B.2})$$

où  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont les aires des impulsions arrivant respectivement à  $t = 0$  et  $t = \tau$ .

## Annexe B. Écho de photon en présence d'ailes de phonons

---

On suppose que le système est initialement dans l'état fondamental :

$$\psi(0^-) = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.3})$$

La première impulsion a pour effet d'amener le système dans une superposition d'états :

$$\psi(0^+) = U_1 \psi(0^-) = \begin{pmatrix} \cos \theta_1 \\ -\sin \theta_1 \end{pmatrix} \quad (\text{B.4})$$

Le système évolue ensuite librement pendant une durée  $\tau$  :

$$\psi(\tau^-) = U(\tau) \psi(0^+) = \begin{pmatrix} \cos \theta_1 \\ -\sin \theta_1 e^{-i\omega\tau} e^{-\Gamma\tau/2} \end{pmatrix} \quad (\text{B.5})$$

La deuxième impulsion génère alors une nouvelle rotation :

$$\psi(\tau^+) = U_2 \psi(\tau^-) = \begin{pmatrix} \cos \theta_1 \cos \theta_2 - \sin \theta_1 \sin \theta_2 e^{-i\omega\tau} e^{-\Gamma\tau/2} \\ -\cos \theta_1 \sin \theta_2 - \sin \theta_1 \cos \theta_2 e^{-i\omega\tau} e^{-\Gamma\tau/2} \end{pmatrix} \quad (\text{B.6})$$

Le système évolue ensuite librement. Pour  $t > \tau$ , on a :

$$\psi(t) = U(t - \tau) \psi(\tau^+) = \begin{pmatrix} \cos \theta_1 \cos \theta_2 - \sin \theta_1 \sin \theta_2 e^{-i\omega\tau} e^{-\Gamma\tau/2} \\ -\cos \theta_1 \sin \theta_2 e^{-i\omega(t-\tau)} e^{-\Gamma(t-\tau)/2} - \sin \theta_1 \cos \theta_2 e^{-i\omega t} e^{-\Gamma t/2} \end{pmatrix} \quad (\text{B.7})$$

$$\begin{aligned} \rho_{12}(t) &= \langle \psi(t) | 1 \rangle \langle 2 | \psi(t) \rangle \\ &= -\cos \theta_1 \sin \theta_1 \sin^2 \theta_2 e^{-i\omega(2\tau-t)} e^{-\Gamma t/2} - \cos^2 \theta_1 \cos \theta_2 \sin \theta_2 e^{i\omega(t-\tau)} e^{-\Gamma(t-\tau)/2} \\ &\quad + \cos \theta_2 \sin^2 \theta_1 \sin \theta_2 e^{-i\omega(t-\tau)} e^{-\Gamma(t+\tau)/2} - \cos \theta_1 \cos^2 \theta_2 \sin \theta_1 e^{i\omega t} e^{-\Gamma t/2} \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

Étant donné qu'on étudie un ensemble inhomogène, possédant une distribution large de pulsations  $\omega$ , on aura un effet d'interférence constructive seulement pour le premier terme lorsque  $t = 2\tau$ .

En réalité, les boîtes étant dispersées spatialement, le temps  $\tau$  séparant les deux impulsions dépend de la position dans l'échantillon. Cependant, la géométrie employée, où le signal est mesuré dans la direction  $2k_1 - k_2$ , permet de s'affranchir de cet effet. En effet, on peut montrer que toutes les ondes émises au temps  $2\tau(\mathbf{r})$ , où  $\tau(\mathbf{r})$  est le temps séparant l'arrivée des deux impulsions au point de coordonnées  $\mathbf{r}$ , sont en phase par rapport à l'émission dans la direction  $2k_1 - k_2$ .

Le champ électrique émis dans la direction  $2k_1 - k_2$  s'obtient en sommant sur les contributions des différentes boîtes :

## B.2. Prise en compte des ailes de phonons acoustiques

$$E(t) \propto \sum_j \rho_{12}(j,t) \propto \sum_j \sin 2\theta_{1,j} \sin^2 \theta_{2,j} e^{-\Gamma_j t/2} e^{-i\omega_j(2\tau-t)} \quad (\text{B.9})$$

où les aires des impulsions  $\theta_{1,j}$  et  $\theta_{2,j}$ , le taux de déphasage  $\Gamma_j$  et la pulsation  $\omega_j$  dépendent de la boîte  $j$  considérée.

Pour une sommation sur un grand nombre de boîtes, le facteur de phase  $e^{-i\omega_j(2\tau-t)}$  donne une fonction Dirac qui impose la relation  $t = 2\tau$  pour obtenir un signal d'écho de photon.

On remarque que le signal maximum est obtenue dans le cas où  $\theta_{1,j} = \pi/4$  et  $\theta_{2,j} = \pi/2$ . Pour des aires de plus en plus grandes, on aura des oscillations analogues aux oscillations de Rabi. Cependant, si les dipôles des boîtes ne sont pas homogènes dans l'ensemble considéré, on aura un amortissement de ces oscillations.

Si on se place à faible excitation, c'est à dire dans le régime en  $\chi^3$ , l'amplitude du champ électrique est proportionnelle à

$$E(2\tau) \propto \sum_j \theta_{1,j} \theta_{2,j}^2 e^{-\Gamma_j \tau} \quad (\text{B.10})$$

Si on suppose que  $\Gamma_j = 2/T_2$  ne dépend pas de la boîte considérée, l'amplitude du champ électrique décroît comme  $e^{-\Gamma \tau}$ . L'intensité du signal décroît donc comme  $e^{-2\Gamma \tau} = e^{-4\tau/T_2}$ . On retrouve bien le fait que le temps de déphasage  $T_2$  est égale à 4 fois le temps de déclin de l'intensité en fonction du délai temporel  $\tau$  entre les deux impulsions. De plus, dans cette expression, l'amplitude du champ électrique est proportionnelle au nombre de boîtes résonantes avec l'excitation. C'est pourquoi l'intensité du signal d'écho de photon est proportionnelle au carré de l'absorption (voir encart de la figure 5.1).

## B.2 Prise en compte des ailes de phonons acoustiques

On reprend le calcul précédent, mais en considérant maintenant l'état quantique complet électron-phonon. Dans l'état initial, les parties électron et phonon sont supposées factorisables (non-intriquées). La partie phonon initiale est état propre lorsque l'électron est dans l'état  $s$ . Cependant, lors des rotations imposées à l'état électronique dans la base  $(s,p)$ , cet état phonon ne sera plus état propre et va évoluer de manière intriquée à la partie électronique. Pour simplifier, on supposera que  $\theta_1 = \theta_2 = \theta$ . Dans le cas général, la dépendance en  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sera la même que celle trouvée dans le cas idéal précédent. De plus, on néglige l'amortissement  $\Gamma$  de la cohérence.

On notera  $|n_j\rangle$  et  $|\widetilde{m}_j\rangle$  les états propres de phonons lorsque l'état électronique est respectivement  $s$  ou  $p_x$ .

## Annexe B. Écho de photon en présence d'ailes de phonons

$$\psi(0^-) = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \otimes \prod_i |n_j^0\rangle \quad (\text{B.11})$$

$$\psi(0^+) = U_1 \psi(0^-) = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle \quad (\text{B.12})$$

$$\psi(\tau^-) = U(\tau) \psi(0^+) = U(\tau) \begin{pmatrix} \cos \theta \\ 0 \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle + U(\tau) \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle \quad (\text{B.13})$$

Pour décrire l'évolution dans l'état  $p$ , on exprime les états propres  $|n_j^0\rangle$  dans la base  $|\widetilde{m}_j\rangle$  en introduisant une relation de fermeture :

$$\psi(\tau^-) = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ 0 \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle e^{-in_j^0 \omega_j \tau} + e^{-i\omega_0 \tau} \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j \left\{ \sum_m \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle | \widetilde{m}_j \rangle e^{-im\omega_j \tau} \right\} \quad (\text{B.14})$$

On a ensuite la rotation induite par la deuxième impulsion :

$$\psi(\tau^+) = \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \theta \\ -\cos \theta \sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle e^{-in_j^0 \omega_j \tau} + e^{-i\omega_0 \tau} \begin{pmatrix} -\sin^2 \theta \\ -\cos \theta \sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j \left\{ \sum_m \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle | \widetilde{m}_j \rangle e^{-im\omega_j \tau} \right\} \quad (\text{B.15})$$

Pour simplifier on ne garde que les termes qui vont contribuer à l'écho de photon (cf ci-dessus) :

$$\psi(\tau^+) = \begin{pmatrix} 0 \\ -\cos \theta \sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j |n_j^0\rangle e^{-in_j^0 \omega_j \tau} + e^{-i\omega_0 \tau} \begin{pmatrix} -\sin^2 \theta \\ 0 \end{pmatrix} \otimes \prod_j \left\{ \sum_m \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle | \widetilde{m}_j \rangle e^{-im\omega_j \tau} \right\} + \dots \quad (\text{B.16})$$

On réexprime à nouveau les parties phonons dans leurs bases respectives d'état propres :

$$\begin{aligned} \psi(2\tau) &= e^{-i\omega_0 \tau} \begin{pmatrix} 0 \\ -\cos \theta \sin \theta \end{pmatrix} \otimes \prod_j \left\{ \sum_m \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle | \widetilde{m}_j \rangle e^{-i(n_j^0 + m)\omega_j \tau} \right\} \\ &+ e^{-i\omega_0 \tau} \begin{pmatrix} -\sin^2 \theta \\ 0 \end{pmatrix} \otimes \prod_j \left\{ \sum_k \left[ \sum_m \langle k_j | \widetilde{m}_j \rangle \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle e^{-im\omega_j \tau} \right] e^{-ik\omega_j \tau} | k_j \rangle \right\} \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

Et finalement on exprime les parties phonons dans la même base (ici celle de l'état  $s$ )

$$\sum_m \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle | \widetilde{m}_j \rangle e^{-i(n_j^0 + m)\omega_j \tau} = \sum_k \left[ \sum_m \langle k_j | \widetilde{m}_j \rangle \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle e^{-im\omega_j \tau} \right] e^{-in_j^0 \omega_j \tau} | k_j \rangle \quad (\text{B.18})$$

## B.2. Prise en compte des ailes de phonons acoustiques

Ce qui nous permet au final de calculer la polarisation, définie par :

$$P(2\tau) = \langle d(2\tau) \rangle = \langle \psi(2\tau) | g \rangle \langle e | \psi(2\tau) \rangle \quad (\text{B.19})$$

$$P(2\tau) = -\cos \theta \sin^3 \theta \prod_j \left\{ \sum_k \left| \sum_m \langle k_j | \widetilde{m}_j \rangle \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle e^{-im\omega_j\tau} \right|^2 e^{i(k-n_j^0)\omega_j\tau} \right\} \quad (\text{B.20})$$

Pour un mode de phonon  $j$  fixé, on développe le terme ci-dessus en puissances de  $S_j$  :

$$\begin{aligned} & \sum_k \left| \sum_m \langle k_j | \widetilde{m}_j \rangle \langle \widetilde{m}_j | n_j^0 \rangle e^{-im\omega_j\tau} \right|^2 e^{i(k-n_j^0)\omega_j\tau} \\ &= 1 - 2(2n_j + 1)S_j^2(1 - \cos \omega_j\tau) + 4S_j^2 \sin^2(\omega_j\tau/2) [n_j e^{-i\omega_j\tau} + (n_j + 1)e^{i\omega_j\tau}] + 0(S^3) \end{aligned} \quad (\text{B.21})$$

La partie réelle de cette expression s'écrit  $1 - 8(2n_j + 1)S_j^2 \sin^2(\omega_j\tau/2)$ .

Il faut prendre le produit de ce terme sur tous les modes de phonons  $j$  qui forment un continuum. On utilise alors la propriété  $\prod_{i=1}^N (1 - x_i/N) \underset{N \rightarrow \infty}{=} \exp(-\sum_{i=1}^N x_i/N)$ . De plus, comme on s'intéresse au module, on ne garde que la partie réelle de l'expression ci-dessus dans l'exponentielle, ce qui conduit à :

$$|P(2\tau)| \propto \exp \left( - \sum_j 8(2n_j + 1)S_j^2 \sin^2 \left( \frac{\omega_j\tau}{2} \right) \right) \quad (\text{B.22})$$

Finalement on récrit cette expression en fonction de  $f$  :

$$|P(2\tau)| \propto \exp \left( -8 \int_{-\infty}^{+\infty} dE f(E) \sin^2 \left( \frac{Et}{2\hbar} \right) \right) \quad (\text{B.23})$$



# Annexe C

## Liste de publications

### Polarons excitoniques

#### **Evidence for excitonic polarons in InAs/GaAs quantum dots.**

V. Preisler, T. Grange, R. Ferreira, L. A. de Vaultier, Y. Guldner, F. J. Teran, M. Potemski and A. Lemaître.

*Phys. Rev. B* **73**, 075320 (2006).

### Relaxation des polarons

#### **Polaron relaxation in self-assembled quantum dots : Breakdown of the semiclassical model.**

T Grange, R Ferreira, and G Bastard.

*Phys. Rev. B* **76**, 241304(R) (2007).

### Retournement du spin

#### **Singlet and triplet polaron relaxation in doubly charged self-assembled quantum dots.**

T. Grange, E. A. Zibik, R. Ferreira, G. Bastard, B. A. Carpenter, P. J. Phillips, D. Stehr, S. Winnerl, M. Helm, M. J. Steer, M. Hopkinson, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick and L. R. Wilson.

*New J. Phys.* **9** 259 (2007).

### Décohérence

#### **Intersublevel polaron dephasing in self-assembled quantum dots**

E. A. Zibik, T. Grange, B. A. Carpenter, R. Ferreira, G. Bastard, N. Q. Vinh, P. J. Phillips, M. J. Steer, M. Hopkinson, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick, and L. R. Wilson.

*Phys. Rev. B* **77**, 041307(R) (2008).





# Bibliographie

- [1] G. Bastard. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. Les Editions de Physique, Les Ulis (1988).
- [2] D. Bimberg, M. Grundmann, et N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley (1999).
- [3] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, et D. G. Deppe. “1.3  $\mu$ m room-temperature GaAs-based quantum-dot laser”. *Applied Physics Letters* **73**, 2564 (1998).
- [4] N. Anscombe. “Join up the quantum dots”. *Nature Photonics* **1**, 360 (2007).
- [5] D. Loss et D. P. DiVincenzo. “Quantum computation with quantum dots”. *Phys. Rev. A* **57**, 120 (1998).
- [6] M. S. Sherwin, A. Imamoglu, et T. Montroy. “Quantum computation with quantum dots and terahertz cavity quantum electrodynamics”. *Phys. Rev. A* **60**, 3508 (1999).
- [7] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. Schoenfeld, P. Petroff, L. Zhang, E. Hu, et A. Imamoglu. “A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device”. *Science* **290**, 2282 (2000).
- [8] R. Stevenson, R. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. Ritchie, et A. Shields. “A semiconductor source of triggered entangled photon pairs.” *Nature (London)* **439**, 179 (2006).
- [9] S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, J.-M. Gérard, et V. Thierry-Mieg. “Intraband absorption in n-doped InAs/GaAs quantum dots”. *Applied Physics Letters* **71**, 2785 (1997).
- [10] S. Maimon, E. Finkman, G. Bahir, S. E. Schacham, J. M. Garcia, et P. M. Petroff. “Intersublevel transitions in InAs/GaAs quantum dots infrared photodetectors”. *Applied Physics Letters* **73**, 2003 (1998).
- [11] S. Sauvage, P. Boucaud, R. P. S. M. Lobo, F. Bras, G. Fishman, R. Prazeres, F. Glotin, J. M. Ortega, et J.-M. Gérard. “Long polaron lifetime in InAs/GaAs self-assembled quantum dots”. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 177402 (2002).
- [12] E. A. Zibik, L. R. Wilson, R. P. Green, G. Bastard, R. Ferreira, P. J. Phillips, D. A. Carder, J.-P. R. Wells, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick, M. J. Steer, et M. Hopkinson. “Intraband relaxation via polaron decay in InAs self-assembled quantum dots”. *Physical Review B* **70**, 161305 (2004).

- [13] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Le-maître, et J. M. Gérard. “Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons”. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152 (1999).
- [14] X.-Q. Li, H. Nakayama, et Y. Arakawa. “Phonon bottleneck in quantum dots : Role of lifetime of the confined optical phonons”. *Phys. Rev. B* **59**, 5069 (1999).
- [15] O. Verzelen. *Interaction électron-phonon LO dans les boîtes quantiques d’InAs/GaAs*. Thèse de doctorat, Université Paris 6 (2002).
- [16] V. Presler. *Interaction porteurs-phonons dans les boîtes quantiques InAs/GaAs : Polarons électroniques et polarons excitoniques*. Thèse de doctorat, Université Paris 6 (2006).
- [17] T. D. Krauss et F. W. Wise. “Coherent Acoustic Phonons in a Semiconductor Quantum Dot”. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5102 (1997).
- [18] I. Stranski et V. Krastanov. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Abh. Math. Naturwiss. Kl.* **146**, 797 (1939).
- [19] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, et G. L. Roux. “Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices”. *Applied Physics Letters* **47**, 1099 (1985).
- [20] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, et G. Bastard. “Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs”. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716 (1994).
- [21] P. Yu et M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, New York (2001).
- [22] J. Marzin et G. Bastard. “Calculation of the energy levels in InAs/GaAs quantum dots”. *Solid state communications* **92**, 437 (1994).
- [23] C. Pryor. “Eight-band calculations of strained InAs/GaAs quantum dots compared with one-, four-, and six-band approximations”. *Phys. Rev. B* **57**, 7190 (1998).
- [24] O. Stier, M. Grundmann, et D. Bimberg. “Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band  $k \cdot p$  theory”. *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- [25] A. J. Williamson, L. W. Wang, et A. Zunger. “Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **62**, 12963 (2000).
- [26] S. Lee, L. Jönsson, J. W. Wilkins, G. W. Bryant, et G. Klimeck. “Electron-hole correlations in semiconductor quantum dots with tight-binding wave functions”. *Phys. Rev. B* **63**, 195318 (2001).
- [27] S. Hameau, J. N. Isaia, Y. Guldner, E. Deleporte, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, et J. M. Gérard. “Far-infrared magnetospectroscopy of

## Bibliographie

---

- polaron states in self-assembled InAs/GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **65**, 085316 (2002).
- [28] A. Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*. Thèse de doctorat, Université Paris 6 (2002).
- [29] D. P. Nguyen. *Confinements non-usuels dans les boîtes quantiques semiconductrices*. Thèse de doctorat, Université Paris 6 (2005).
- [30] G. Bester et A. Zunger. “Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry : Atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects”. *Phys. Rev. B* **71**, 045318 (2005).
- [31] G. Bester, A. Zunger, X. Wu, et D. Vanderbilt. “Effects of linear and nonlinear piezoelectricity on the electronic properties of InAs/GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **74**, 081305 (2006).
- [32] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, et L. R. Ram-Mohan. “Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys”. *Journal of Applied Physics* **89**, 5815 (2001).
- [33] B. Grandidier, Y. Niquet, B. Legrand, J. Nys, C. Priester, D. Stiévenard, J. Gérard, et V. Thierry-Mieg. “Imaging the Wave-Function Amplitudes in Cleaved Semiconductor Quantum Boxes”. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1068 (2000).
- [34] A. V. Khaetskii et Y. V. Nazarov. “Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots”. *Phys. Rev. B* **64**, 125316 (2001).
- [35] T. Inoshita et H. Sakaki. “Electron relaxation in a quantum dot : Significance of multiphonon processes”. *Phys. Rev. B* **46**, 7260 (1992).
- [36] V. Preisler, R. Ferreira, S. Hameau, L. de Vaultier, Y. Guldner, M. Sadowski, et A. Lemaître. “Hole–LO phonon interaction in InAs/ GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **72**, 115309 (2005).
- [37] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, et G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications*. Wiley, New York (1992).
- [38] E. Jaynes et F. Cummings. “Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser”. *Proceedings of the IEEE* **51**, 89 (1963).
- [39] O. Verzelen, R. Ferreira, et G. Bastard. “Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots”. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 146803 (2002).
- [40] V. Preisler, T. Grange, R. Ferreira, L. de Vaultier, Y. Guldner, F. Teran, M. Potemski, et A. Lemaître. “Evidence for excitonic polarons in InAs/ GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **73**, 75320 (2006).
- [41] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, O. Stier, A. Madhukar, et D. Bimberg. “Enhanced Polar Exciton-LO-Phonon Interaction in Quantum Dots”. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4654 (1999).

- [42] G. A. Narvaez et A. Zunger. “Nominally forbidden transitions in the interband optical spectrum of quantum dots”. *Phys. Rev. B* **74**, 045316 (2006).
- [43] U. Bockelmann et G. Bastard. “Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases”. *Phys. Rev. B* **42**, 8947 (1990).
- [44] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès, et C. Weisbuch. “Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems”. *Phys. Rev. B* **44**, 10945 (1991).
- [45] O. Verzelen, R. Ferreira, et G. Bastard. “Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots”. *Phys. Rev. B* **62**, R4809 (2000).
- [46] L. Jacak, J. Krasnyj, D. Jacak, et P. Machnikowski. “Anharmonicity-induced polaron relaxation in GaAs/InAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **65**, 113305 (2002).
- [47] F. Vallée et F. Bogani. “Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs”. *Phys. Rev. B* **43**, 12049 (1991).
- [48] A. Debernardi, S. Baroni, et E. Molinari. “Anharmonic Phonon Lifetimes in Semiconductors from Density-Functional Perturbation Theory”. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1819 (1995).
- [49] A. Debernardi. “Phonon linewidth in III-V semiconductors from density-functional perturbation theory”. *Phys. Rev. B* **57**, 12847 (1998).
- [50] P. G. Klemens. “Anharmonic Decay of Optical Phonons”. *Phys. Rev.* **148**, 845 (1966).
- [51] S. Barman et G. P. Srivastava. “Long-wavelength nonequilibrium optical phonon dynamics in cubic and hexagonal semiconductors”. *Phys. Rev. B* **69**, 235208 (2004).
- [52] D. von der Linde, J. Kuhl, et H. Klingenberg. “Raman Scattering from Nonequilibrium LO Phonons with Picosecond Resolution”. *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1505 (1980).
- [53] G. Srivastava. *The Physics of Phonons*. Institute of Physics Publishing, Bristol (1990).
- [54] G. P. Srivastava. *The Physics of Phonons*. Hilger, Bristol (1990).
- [55] S. Adachi. *GaAs and Related Materials : Bulk Semiconducting and Superlattice Properties*. World Scientific (1994).
- [56] P. Wickboldt, E. Anastassakis, R. Sauer, et M. Cardona. “Raman phonon piezospectroscopy in GaAs : Infrared measurements”. *Phys. Rev. B* **35**, 1362 (1987).
- [57] M. Tonouchi. “Cutting-edge terahertz technology”. *Nature Photonics* **1**, 97 (2007).

## Bibliographie

---

- [58] B. A. Carpenter, E. A. Zibik, M. L. Sadowski, L. R. Wilson, D. M. Whittaker, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick, M. Potemski, M. J. Steer, et M. Hopkinson. “Intraband magnetospectroscopy of singly and doubly charged n-type self-assembled quantum dots”. *Phys. Rev. B* **74**, 161302 (2006).
- [59] T. P. Pearsall, R. Carles, et J. C. Portal. “Single longitudinal-mode optical phonon scattering in Ga[sub 0.47]In[sub 0.53]As”. *Applied Physics Letters* **42**, 436 (1983).
- [60] K. J. Nash, M. S. Skolnick, et S. J. Bass. “Electron-phonon interactions in indium gallium arsenide”. *Semiconductor Science and Technology* **2**, 329 (1987).
- [61] T. Fujisawa, D. Austing, Y. Tokura, Y. Hirayama, et S. Tarucha. “Allowed and forbidden transitions in artificial hydrogen and helium atoms”. *Nature (London)* (2002).
- [62] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter, et J. J. Finley. “Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots”. *Nature (London)* **432**, 81 (2004).
- [63] S. Cortez, O. Krebs, S. Laurent, M. Senes, X. Marie, P. Voisin, R. Ferreira, G. Bastard, J.-M. Gérard, et T. Amand. “Optically Driven Spin Memory in n-Doped InAs-GaAs Quantum Dots”. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 207401 (2002).
- [64] P. C. Findlay, C. R. Pidgeon, R. Kotitschke, A. Hollingworth, B. N. Murdin, C. J. G. M. Langerak, A. F. G. van der Meer, C. M. Ciesla, J. Oswald, A. Homer, G. Springholz, et G. Bauer. “Auger recombination dynamics of lead salts under picosecond free-electron-laser excitation”. *Phys. Rev. B* **58**, 12908 (1998).
- [65] E. A. Zibik, L. R. Wilson, R. P. Green, G. Bastard, R. Ferreira, P. J. Phillips, D. A. Carder, J. P. R. Wells, M. S. Skolnick, J. W. Cockburn, *et al.* “The polaronic nature of intraband relaxation in InAs/GaAs self-assembled quantum dots”. *Physica E* **26**, 408 (2005).
- [66] M. Ediger, G. Bester, B. D. Gerardot, A. Badolato, P. M. Petroff, K. Karrai, A. Zunger, R. J. Warburton, M. Ediger, G. Bester, B. D. Gerardot, A. Badolato, P. M. Petroff, K. Karrai, A. Zunger, *et al.* “Fine Structure of Negatively and Positively Charged Excitons in Semiconductor Quantum Dots : Electron-Hole Asymmetry”. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 036808 (2007).
- [67] J. Isaia, L. Vaulchier, S. Hameau, R. Ferreira, Y. Guldner, E. Deleporte, J. Zeman, V. Thierry-Mieg, et J. Gérard. “Far-infrared probe of size dispersion and population fluctuations in doped self-assembled quantum dots”. *The European Physical Journal B* **35**, 209 (2003).
- [68] G. Dresselhaus. “Spin-Orbit Coupling Effects in Zinc Blende Structures”. *Phys. Rev.* **100**, 580 (1955).
- [69] M. Cardona, N. E. Christensen, et G. Fasol. “Relativistic band structure and spin-orbit splitting of zinc-blende-type semiconductors”. *Phys. Rev. B* **38**, 1806 (1988).

- [70] A. Tackeuchi, O. Wada, et Y. Nishikawa. “Electron spin relaxation in InGaAs/InP multiple-quantum wells”. *Applied Physics Letters* **70**, 1131 (1997).
- [71] D. V. Bulaev et D. Loss. “Spin relaxation and anticrossing in quantum dots : Rashba versus Dresselhaus spin-orbit coupling”. *Phys. Rev. B* **71**, 205324 (2005).
- [72] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, *et al.* “Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In (Ga) As/(Al) GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **65**, 195315 (2002).
- [73] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, et Y. Masumoto. “Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots”. *Physical Review Letters* **94**, 116601 (2005).
- [74] T. Grange, E. Zibik, R. Ferreira, G. Bastard, B. Carpenter, P. Phillips, D. Stehr, S. Winnerl, M. Helm, M. Steer, M. Hopkinson, J. Cockburn, M. Skolnick, et L. Wilson. “Singlet and triplet polaron relaxation in doubly charged self-assembled quantum dots”. *New J. Phys.* **9**, 259 (2007).
- [75] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, et D. Bimberg. “Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots”. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157401 (2001).
- [76] D. Birkedal, K. Leosson, et J. M. Hvam. “Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots”. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 227401 (2001).
- [77] J. Petta, A. Johnson, J. Taylor, E. Laird, A. Yacoby, M. Lukin, C. Marcus, M. Hanson, et A. Gossard. “Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots”. *Science* **309**, 2180 (2005).
- [78] A. Greilich, D. Yakovlev, A. Shabaev, A. Efros, I. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, et M. Bayer. “Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots”. *Science* **313**, 341 (2006).
- [79] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette. “Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission”. *Phys. Rev. B* **63**, 155307 (2001).
- [80] I. Favero, G. Cassaboïs, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, P. Roussignol, et J. M. Gérard. “Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots”. *Phys. Rev. B* **68**, 233301 (2003).
- [81] A. Vagov, V. M. Axt, T. Kuhn, W. Langbein, P. Borri, et U. Woggon. “Nonmonotonous temperature dependence of the initial decoherence in quantum dots”. *Phys. Rev. B* **70**, 201305 (2004).
- [82] S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, M. Broquier, C. Crépin, J.-M. Ortega, et J.-M. Gérard. “Dephasing of intersublevel polarizations in InAs/GaAs self-assembled quantum dots”. *Phys. Rev. B* **66**, 153312 (2002).

## Bibliographie

---

- [83] J. Shah. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Springer, New York (1999).
- [84] G. Mahan. *Many-Particle Physics*. Plenum Publishing Corporation (1990).
- [85] U. Weiss. *Quantum Dissipative Systems*. World Scientific (1999).
- [86] A. Vagov, V. M. Axt, et T. Kuhn. “Electron-phonon dynamics in optically excited quantum dots : Exact solution for multiple ultrashort laser pulses”. *Phys. Rev. B* **66**, 165312 (2002).
- [87] S. Mukamel. *Principles of nonlinear optical spectroscopy*. Oxford University Press, New York (1995).
- [88] E. A. Muljarov et R. Zimmermann. “Dephasing in Quantum Dots : Quadratic Coupling to Acoustic Phonons”. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 237401 (2004).
- [89] A. Vagov, V. M. Axt, et T. Kuhn. “Impact of pure dephasing on the nonlinear optical response of single quantum dots and dot ensembles”. *Phys. Rev. B* **67**, 115338 (2003).
- [90] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, et A. D. Wieck. “Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement”. *Phys. Rev. B* **71**, 115328 (2005).





# Abstract

This thesis presents a theoretical study of electron-phonon interaction in InAs/GaAs quantum dots, where the strong coupling regime between confined carriers and optical phonons leads to the formation of entangled states known as polarons.

Firstly, we take into account the strong coupling between exciton and optical phonons in order to calculate interband magneto-absorption. The good agreement with photoluminescence excitation strongly supports the existence of excitonic polaron levels in quantum dots.

Secondly we calculate the lifetime of polaron states. Their instability is shown to be triggered by their phonon component. However, a semiclassical model does not explain the experimental results. We demonstrate the need to take into account the different anharmonic processes, their efficiency being very sensitive to the polaron energy. These calculations allow to explain the non-monotonous variation of the measured polaron lifetime as a function of their energy. In particular, longer polaron lifetime are expected below the optical phonon energy.

Then we study the relaxation dynamics in doubly charged quantum dots. The spin-orbit interaction, together with electron-phonon couplings, allows spin-flip processes between singlet and triplet states. We obtain a good agreement with pump-probe experiment. In particular, we show that the relaxation time between the excited singlet and triplet states depends strongly on the dot anisotropy.

Finally we study the optical coherence of the fundamental intraband transition. The thermal broadening of this transition is shown to be due to real and virtual transition towards the second excited level. In addition, the calculated absorption exhibits acoustic phonon sidebands peaked on both sides of the zero phonon line. We simulate the photon echo experiment. A good agreement is found with experiment. In particular, an initial oscillation of coherence is attributed to a coherent excitation of the phonon sidebands.



# Résumé

Cette thèse présente une étude théorique des interactions électron-phonon dans les boîtes quantiques InAs/GaAs, où le régime de couplage fort entre les porteurs confinés dans les boîtes et les phonons optiques a pour conséquence la formation d'états intriqués appelés polarons.

Nous prenons tout d'abord en compte le couplage fort entre excitons et phonons optiques afin de calculer l'absorption interbande sous champ magnétique. Le bon accord avec des expériences de photoluminescence d'excitation met en évidence l'existence de niveaux de polarons excitoniques.

Nous calculons ensuite le temps de vie des états polarons. La relaxation de ces états mixtes est due à l'instabilité de leur composante phonon. Cependant, un modèle semi-classique ne suffit pas à rendre compte des résultats expérimentaux. Nous démontrons la nécessité de prendre en compte de manière détaillée les différents processus anharmoniques, dont l'efficacité dépend fortement de l'énergie du polaron. Ces calculs permettent d'expliquer les variations non monotones du temps de vie mesuré des polarons avec leur énergie et, en outre, de prévoir des temps de vie beaucoup plus longs pour des énergies inférieures à l'énergie des phonons optiques.

Nous étudions ensuite la dynamique de relaxation dans les boîtes doublement chargées. L'interaction spin-orbite, associée aux couplages électron-phonon, entraîne des processus de retournement du spin entre états singulets et triplets. Nous obtenons un bon accord avec des expériences pompe-sonde. En particulier, nous montrons que le temps de relaxation entre l'état singulet excité et les états triplets dépend fortement de l'anisotropie des boîtes.

Finalement, nous étudions la cohérence optique de la transition intrabande fondamentale. L'élargissement de cette transition avec la température est dû à la fois aux transitions réelles et virtuelles vers le deuxième état excité. D'autre part, cette transition comporte des ailes de phonons acoustiques piquées de part et d'autre de la raie à zéro phonon. Nous simulons des expériences d'écho de photon. Un bon accord est obtenu avec les mesures, notamment au niveau d'une oscillation initiale de la cohérence due à l'excitation cohérente des ailes de phonons acoustiques.